05

Сверхбыстрые фотоиндуцированные явления в магнитном полупроводнике EuO

© П.А. Усачёв, Л.А. Шелухин, В.В. Павлов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе,
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Usachev@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 6 марта 2025 г.
В окончательной редакции 6 марта 2025 г.
Принята к публикации 5 мая 2025 г.

Представлены результаты исследования сверхбыстрых фотоиндуцированных явлений в собственном магнитном полупроводнике EuO с помощью метода двухцветной оптической накачки и зондирования. Экспериментальные данные демонстрируют возникновение фотоиндуцированной прецессии намагниченности в области температур ниже температуры Кюри, возбуждаемой циркулярно поляризованным светом. Выполнены численные оценки для двух возможных механизмов оптического возбуждения прецессии намагниченности, связанных с эффектом оптической ориентации и обратным эффектом Фарадея. На основе теоретического моделирования показано, что оптическая ориентация спина посредством электронного перехода $4f^7 5d^0 \to 4f^6 5d^1$ является запускающим механизмом прецессии намагниченности. Фотовозбуждение EuO светом с энергией фотонов больше энергии запрещенной зоны приводит к образованию магнитных поляронов за счет сильного обменного взаимодействия спина $5d^1$ электрона со спинами $4f$-электронов. Выявлена динамика магнитных поляронов в диапазоне времен от нескольких пикосекунд до микросекунд. При температурах, немного превышающих температуру Кюри, установлено рекордно высокое значение магнитного момента полярона.

Ключевые слова: фотоиндуцированные магнитооптические явления, эффект оптической ориентации, обратный эффект Фарадея, динамика намагниченности, магнитные поляроны, ферромагнитный полупроводник.

DOI: 10.61011/FTT.2025.07.61192.26HH-25

1. Введение

Возможность управления магнитным состоянием материалов с помощью света имеет как фундаментальный интерес, так и является весьма важной для практических применений в области сверхбыстрой записи и обработки информации. Сверхбыстрое оптическое манипулирование намагниченностью представляет собой одну из наиболее перспективных областей физики твердого тела — спинтроники [1,2]. В литературе обсуждаются различные физические механизмы, которые могут быть ответственными за оптическое воздействие на спиновую систему твердых тел. В работе [3] было теоретически предсказано, что свет может действовать как эффективное магнитное поле за счет обратного эффекта Фарадея (ОЭФ). На фемтосекундном масштабе времени ОЭФ был экспериментально продемонстрирован в различных классах материалов [4,5]. ОЭФ возникает в результате нелинейного взаимодействия света с веществом [6]. Микроскопически ОЭФ может быть описан либо как расщепление спиновых подуровней в результате действия оптического эффекта Штарка, либо как вынужденное комбинационное рассеяние света на магнонах, см. [7,8]. Другие механизмы оптического управления намагниченностью основаны на лазерно-индуцированных изменениях магнитной анизотропии [9,10], или за счет сверхбыстрого нагрева магнитной системы короткими лазерными импульсами [11]. В области оптики полупроводников хорошо известен эффект оптической ориентации (ЭОО) [12]. Данный эффект был впервые продемонстрирован как пространственная ориентация атомов, вызванная возбуждением циркулярно поляризованным светом [13]. В твердых телах ЭОО определяет передачу углового момента от фотонов с круговой поляризацией к электронам, ориентация спина которых возникает в результате спин-орбитального взаимодействия. Передача углового момента от оптически возбужденных электронов к коллективной намагниченности может приводить к возникновению магнитного отклика на воздействие света. Например, прецессия намагниченности за счет светового воздействия была показана в разбавленном магнитном полупроводнике (Ga,Mn)As [14]. В случае собственных магнитных полупроводников обменное взаимодействие между спин-поляризованными фотовозбужденными носителями и локальными магнитными моментами может значительно усилить эффект магнитного отклика на фотовозбуждение. Оба эффекта, ОЭФ и ЭОО, возникают за счет воздействия циркулярно поляризованного света на спиновую систему, поэтому важным является установление ключевого механизма оптического возбуждения прецессии. Цель данного исследования заключается в выявлении динамики магнитных состояний в магнитном полупроводнике EuO, вызываемой субпикосекундными лазерными импульсами. Приведен миниобзор исследо-

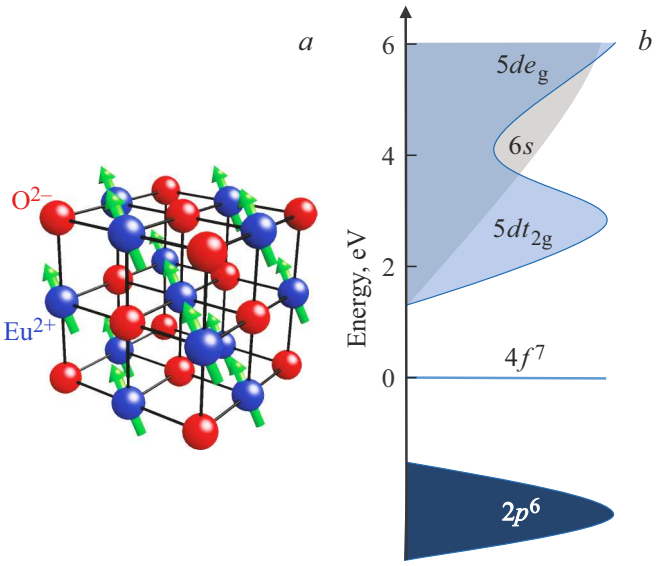

Рис. 1. (*a*) Кристаллографическая, магнитная и (*b*) электронная структура кристалла EuO.

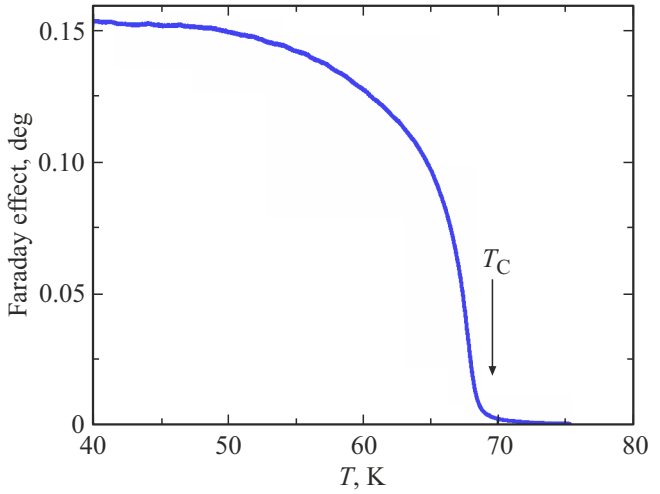

Рис. 2. Зависимость эффекта Фарадея от температуры в EuO [15].

ваний по фотоиндуцированным явлениям в EuO — возбуждению прецессии намагниченности и магнитных поляронов (МП) с большим магнитным моментом.

Оксид европия EuO — это представитель группы халькогенидов EuX, являющихся бинарными соединениями европия Eu и халькогенов (X = O, S, Se и Te). Халькогениды европия EuX обладают рядом уникальных физических свойств, которые определяются их электронной структурой. Оксид европия EuO представляет собой магнитный полупроводник с классическим гейзенберговским ферромагнитным упорядочением. EuO кристаллизуется в кубической сингонии, структура типа NaCl с точечной группой $m3m$, $a = 5.145$ A, $Z = 4$ (см. рис. 1, *a*). Валентная зона и зона проводимости EuO образованы в основном $4f$- и $5d$-состояниями ионов европия Eu^{2+}, соответственно (см. рис. 1, *b*). Ниже температуры Кюри $T_C = 69.8$ K образуется магнитный порядок в системе сильно локализованных $4f^7$ электронов ионов Eu^{2+} со спином $S = 7/2$. На рис. 2 приведена зависимость эффекта Фарадея от температуры в пленке EuO [15]. Как показано, в работе [16], пленки EuO обладают анизотропией типа „легкая плоскость“, поэтому показанные на рис. 2 измерения проведены в наклонной геометрии, а магнитное поле было приложено вдоль плоскости образца. EuO проявляет сильную зависимость между электронными и магнитными свойствами, например, его электрические свойства значительно изменяются при возникновении магнитного порядка. В пленках EuO обнаружены гигантские линейный и квадратичный магнитооптические эффекты Керра [16,17], что является следствием его необычной электронной структуры. EuO является уникальным материалом для возможных практических применений. Например, в EuO было продемонстрировано оптическое управление магнитным параметром порядка [18–20]. В спинтронике EuO может быть использован как мультиферройный материал [21], а также как ферромагнитный материал для элементов спинового транзистора [22].

2. Образцы и методика эксперимента

В экспериментах были использованы пленки оксида европия EuO толщиной $l = 100-200$ nm, эпитаксиально выращенные на подложке из стабилизированного иттрием диоксида циркония $Y:ZrO_2$ (YSZ) и покрытые прозрачным защитным слоем SiO_{2-x} [15,16,20]. Параметр решетки подложки YSZ (5.147 Å) близок к параметру решетки объемного кристалла EuO (5.145 Å). В процессе роста пленок EuO проводился контроль их параметров, подтверждающий высокое кристаллическое качество получаемых образцов. Это обеспечивает достаточно точное совпадение физических характеристик полученных пленок со свойствами объемного EuO. Исследование магнитных свойств пленок EuO проводилось методом СКВИД-магнитометрии [15,16,20], а также посредством измерения магнитооптического эффекта Керра [16]. Полученные данные подтвердили сохранение ключевых магнитных параметров (температура Кюри T_C, намагниченность насыщения M_s), характерных для объемного материала.

На рис. 3 представлена схема экспериментальной установки для регистрации фотоиндуцированной прецессии намагниченности с помощью эффекта Фарадея. Фемтосекундный лазер с энергией фотонов 1.19 eV генерирует импульсы длительностью $t_p = 190$ fs и частотой повторения 5 kHz. С помощью светоделителя происходит разделение света на луч накачки и зондирующий луч. В луче накачки установлен нелинейный кристалл β-BaB_2O_4, который удваивает энергию фотонов до $\hbar\omega = 2.38$ eV за счет генерации второй оптиче-

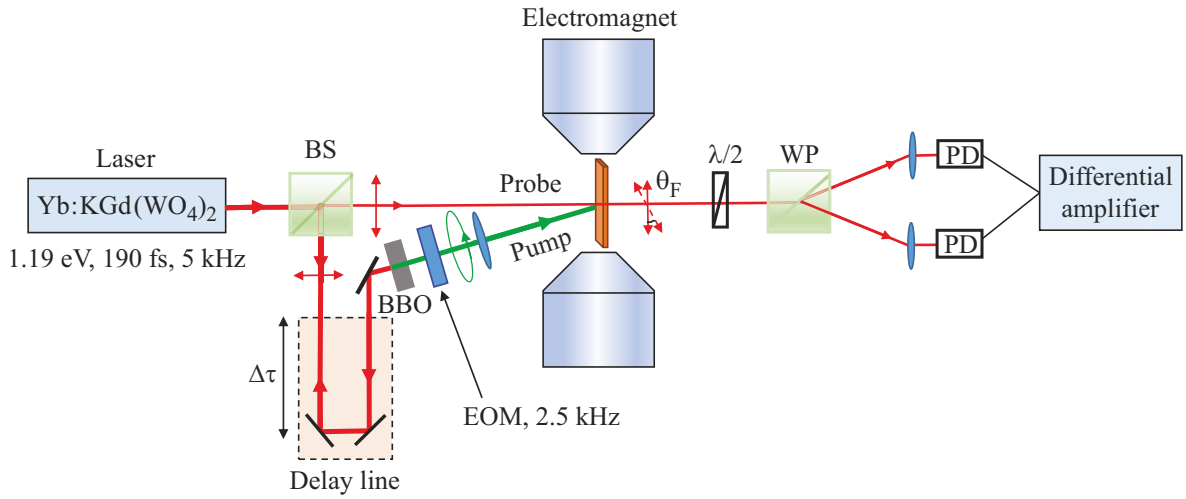

Рис. 3. Оптическая схема экспериментальной установки, основанной на двухцветном методенакачка-зондирование. BS — светоделитель, BBO — нелинейный кристалл бета-бората бария, EOM — электрооптический модулятор, $\lambda/2$ — полуволновая пластина, WP — призма Волластона, PD — фотодиод.

ской гармоники, плотность мощности в луче накачки $j_p = 5\,\mathrm{mJ/cm^2}$. В случае исследования фотоиндуцированной прецессии намагниченности электрооптический модулятор переключает поляризацию импульсов накачки от право- до лево-циркулярной. При исследовании магнитных поляронов с помощью фотоиндуцированного эффекта Фарадея используется механический прерыватель. В обоих случаях модулятор синхронизирован с частотой повторения лазерных импульсов. Фотоиндуцированное изменение эффекта Фарадея регистрируется зондирующим лучом, проходящим через образец в том же месте, где проходит луч накачки. Углы падения лучей на образец составляли: для зондирующего луча — 0 deg, для луча накачки — 20 deg. Фотоиндуцированный сигнал от дифференциального фотоприемника измеряется фазовым детектором, что обеспечивает чувствительность при измерении угла поворота плоскости поляризации света $\sim 10^{-7}$ rad. Данный метод позволяет извлекать слабый искомый фотоиндуцированный эффект, возникающий в результате модуляции поляризации или интенсивности накачки, на фоне сильного немодулированного сигнала эффекта Фарадея.

Образец EuO помещался в оптический криостат, обеспечивающий изменение температуры в диапазоне 10–300 K. Внешнее магнитное поле с индукцией $B = \pm 600\,\mathrm{mT}$ могло быть приложено параллельно либо перпендикулярно плоскости образца. Интервал времени между импульсами накачки и зондирования изменялся с помощью оптико-механической линии задержки. Измеряемой величиной в этом эксперименте являлся угол поворота плоскости поляризации света за счет эффекта Фарадея Θ_F в зависимости от временной задержки $\Delta\tau$. Эту величину можно преобразовать в фотоиндуцированную намагниченность M_z, используя данные по статическим измерениям эффекта Фарадея в EuO. Для пленок EuO с магнитной анизотропией типа „легкая плоскость“ угол поворота плоскости поляризации в фарадеевской геометрии ($\mathbf{B} \parallel \mathbf{k} \parallel \mathbf{z}$, где $\mathbf{k}$ — волновой вектор света, $\mathbf{z}$ — вектор нормали к плоскости образца) линейно зависит от приложенного магнитного поля вплоть до поля насыщения $B_s = 2.4\,\mathrm{T}$. Намагниченность также линейно зависит от магнитного поля с наклоном M_s/B_s. Таким образом, измеренное фотоиндуцированное изменение угла поворота плоскости поляризации света может быть представлено в виде нормированной фотоиндуцированной намагниченности M_z/M_s.

3. Фотоиндуцированная прецессия намагниченности

В этом разделе рассмотрена прецессия фотоиндуцированной намагниченности в EuO, возбуждаемая циркулярно поляризованным светом. В данном эксперименте образец находился при температуре существенно ниже T_C, а внешнее магнитное поле было приложено вдоль плоскости образца.

Результаты исследования возбуждения прецессии намагниченности в пленке EuO за счет светового воздействия приведены на рис. 4, *a*. В отличие от работы [20], в которой прецессия намагниченности возбуждалась импульсами с фиксированной круговой поляризацией, в настоящей работе измерение фотоиндуцированного изменения намагниченности проводилось при модуляции поляризации накачки между правым и левым кругом. Данный метод позволяет полностью исключить вклады, связанные с тепловым изменением намагниченности, поскольку интенсивность света остается постоянной величиной. На рис. 4, *a* точками показаны экспериментальные значения нормированной намагниченности в магнитном поле с индукцией 200 mT, определенные с

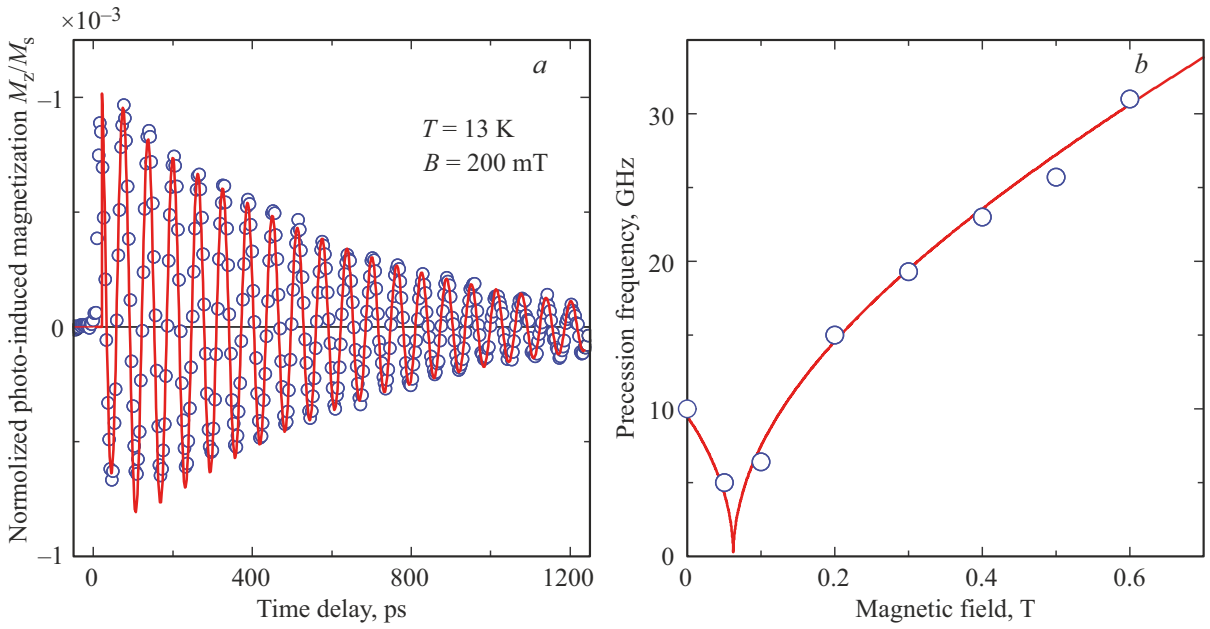

Рис. 4. (*a*) Нормированная фотоиндуцированная намагниченность в пленке EuO. Синие точки представляют экспериментальные данные, красная линия — результат расчетов в соответствии с уравнением (1). (*b*) Зависимость частоты прецессии намагниченности $\Omega/2\pi$ от внешнего магнитного поля. Синие точки представляют экспериментальные данные, а красная линия — результат расчетов в соответствии с уравнением (3).

помощью фотоиндуцированных изменений эффекта Фарадея. Зависимость частоты прецессии намагниченности от величины магнитного поля показана на рис. 4, *b*. Наблюдаемая зависимость демонстрирует полное соответствие с данными, полученными в работе [20]. В диапазоне магнитных полей 0–60 mT наблюдается понижение частоты прецессии, при дальнейшем повышении магнитного поля в диапазоне 200–600 mT частота увеличивается практически линейно с величиной поля. Поскольку тепловыми эффектами изменения намагниченности можно пренебречь, то возможные механизмы запуска прецессии связаны с возбуждением магнитного поля в результате нелинейного взаимодействия циркулярно-поляризованного света с веществом — обратного эффекта Фарадея, либо эффекта оптической ориентации, в результате действия которого может возникнуть эффективное магнитное поле Вейсса.

Для оценки величины вкладов от возможных механизмов запуска прецессии намагниченности необходимо провести теоретическое моделирование возбуждения намагниченности за счет ОЭФ и ЭОО. Магнитный момент **M**, обусловленный $4f$-электронами валентной зоны, может испытывать прецессию при воздействии внутренних или внешних магнитных полей в соответствии с уравнением Ландау-Лифшица [23,24]:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma[\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}] - \alpha \frac{\gamma}{M_s} \left(\mathbf{M} \times [\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}]\right), \qquad (1)$$

где γ — гиромагнитное отношение, α — безразмерная постоянная, характеризующая скорость релаксации намагниченности **M**, $\mathbf{H}_{\text{eff}}$ — эффективное магнитное поле, которое в уравнении (1) является векторной суммой нескольких вкладов:

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_{\text{anis}} + \mathbf{H}_{\text{dem}}, \qquad (2)$$

где $\mathbf{H}_0$ — внешнее магнитное поле, $\mathbf{H}_{\text{anis}}$ — поле анизотропии, $\mathbf{H}_{\text{dem}}$ — поле размагничивания.

Решение уравнения (1) дает формулу частоты прецессии [25]

$$\Omega = \frac{\gamma}{M_s \sin\theta} \sqrt{F_{\theta\theta}F_{\varphi\varphi} - F_{\theta\varphi}^2}, \qquad (3)$$

где $F_{\theta\theta}$, $F_{\varphi\varphi}$ и $F_{\theta\varphi}$ — вторые производные анизотропной части плотности свободной магнитной энергии F относительно координатных углов намагниченности θ и φ в сферической системе координат. Константы анизотропии, необходимые для оценки свободной энергии EuO, известны из литературы, $K_1/M_s \sim -247.5$ Oe и $K_2/M_s \sim 82$ Oe при $T = 4.2$ K [26]. Экспериментальные значения частоты прецессии намагниченности (показаны точками на рис. 4, *b*) полностью соответствуют расчетным значениям (показаны линией на рис. 4, *b*) [20].

Для численной оценки ОЭФ необходимо рассмотреть эффективное магнитное поле $\mathbf{H}^{\text{IFE}}$, которое может быть параметрически сгенерировано световой волной посредством двухфотонного процесса [27]. Это поле может

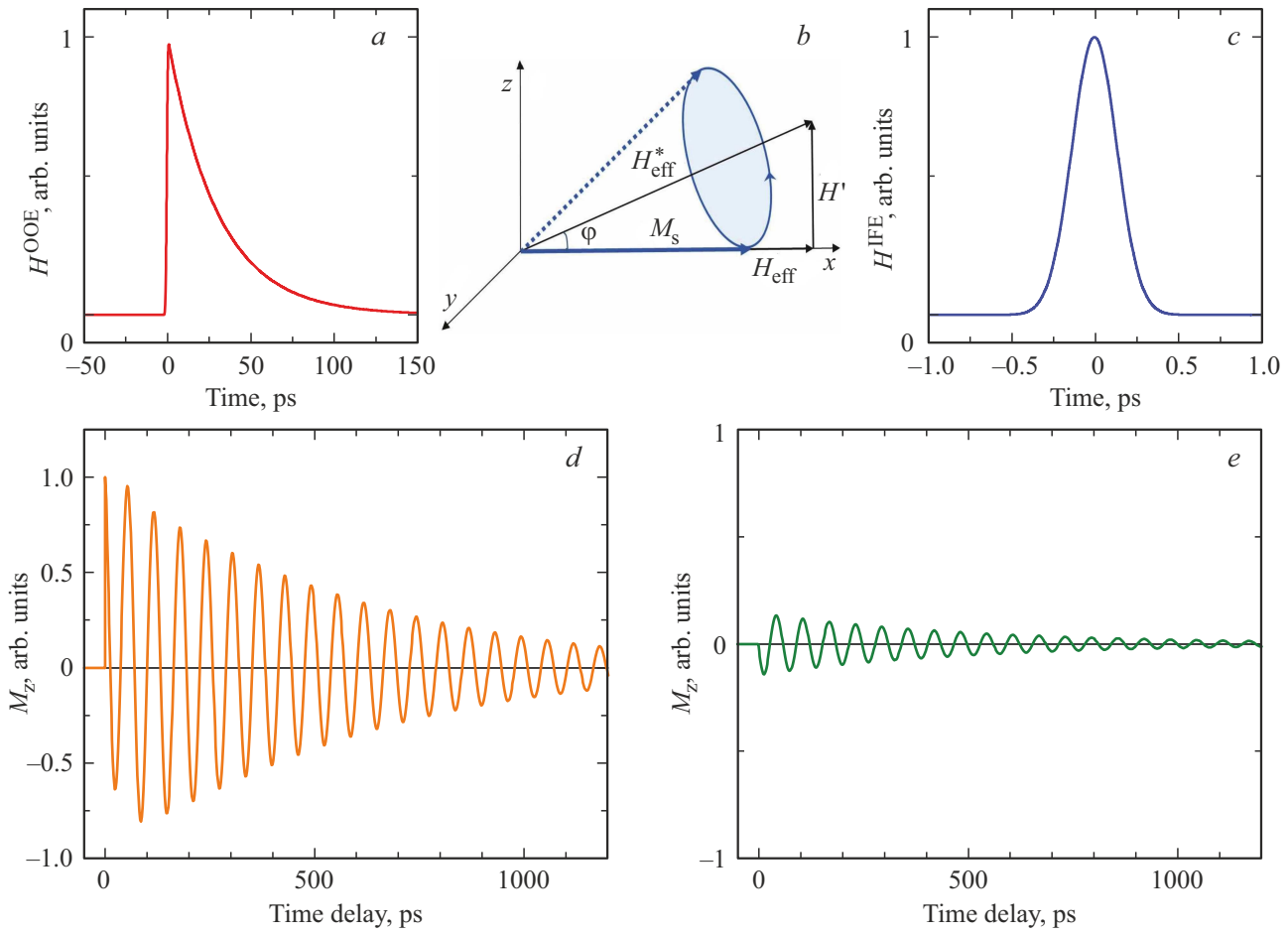

Рис. 5. (*a*) Временная зависимость эффективного магнитного поля за счет ЭОО $\mathbf{H}^{\mathrm{OOE}}$. (*b*) Иллюстрация запуска прецессии намагниченности $\mathbf{M}_s$ за счет эффективного магнитного поля $\mathbf{H}^*_{\mathrm{eff}}$, индуцированного полем световой волны $\mathbf{H}'$. (*c*) Временная зависимость эффективного магнитного поля за счет ОЭФ $\mathbf{H}^{\mathrm{IFE}}$. (*d*) Временная зависимость z-компоненты намагниченности за счет эффекта оптической ориентации. (*e*) Временная зависимость z-компоненты намагниченности за счет обратного эффекта Фарадея.

быть записано следующим образом [28]:

$$\mathbf{H}^{\mathrm{IFE}} = -i\,\frac{\epsilon_0}{\mu_0}\frac{G}{M_s}\,\mathrm{Im}\left[\mathbf{E}\times\mathbf{E}^*\right], \tag{4}$$

где G — величина вектора гирации, $\mathbf{E}$ — электрическое поле электромагнитной волны. Величина G в EuO может быть рассчитана из литературных данных по магнитооптическому эффекту Керра $\theta_K + i\epsilon_K \sim -3 + i\,\mathrm{deg}$ при $\hbar\omega = 2.38\,\mathrm{eV}$ и $T = 10\,\mathrm{K}$ [29] и оптической диэлектрической проницаемости $\epsilon_1 + i\epsilon_2 \sim 2.5 + i1.1$ [30,31]. Индуцированное импульсом накачки магнитное поле $\mathbf{H}^{\mathrm{IFE}}$ не равно нулю только в течение времени действия светового импульса [3,6,32] и быстро спадает за его пределами. Лазерный импульс накачки имеет гауссов профиль:

$$I(t) = \frac{I_0}{\varrho\sqrt{2\pi}}\,\exp\left(-\frac{t^2}{2\varrho^2}\right), \tag{5}$$

где $\varrho = t_p/\sqrt{\ln 256}$ — среднеквадратичная длительность лазерного импульса. Важно отметить, что индуцированное световым импульсом магнитное поле $H^{\mathrm{IFE}} \propto \pm I(\sigma^{\pm})$ меняет знак в зависимости от знака круговой поляризации импульса накачки $\sigma^{\pm}$.

Рассмотрим более детально механизм запуска прецессии намагниченности за счет ОЭФ при импульсной лазерной накачке. В случае субпикосекундного лазерного импульса поле $\mathbf{H}^{\mathrm{IFE}}$ должно определяться главным образом диамагнитным вкладом в ОЭФ [7]. В эксперименте изначально намагниченность лежит в плоскости образца и не может мгновенно отреагировать на внешнее сверхбыстрое воздействие [8]. Поэтому, оценка величины ОЭФ в уравнении (4), основанная на значении вектора гирации G, будет верхней границей, поскольку она включает как диамагнитный вклад, так и зависящий от намагниченности вклад. Магнитный момент $4f$-оболочки $\mathbf{M}_s$, лежащей в плоскости образца, начинает прецессировать с частотой Ω. На рис. 5, *b* показана геометрия эксперимента для запуска прецессии намагничивания в EuO, индуцированной лазерными импульсами. Прецессия происходит вокруг эффективного магнитного поля $\mathbf{H}^*_{\mathrm{eff}}$, которое является векторной сум-

Физические параметры образца EuO, которые необходимы для оценки ОЭФ и ООЭ

Параметр	Символ	Величина	Ед. СИ
Толщина образца	l	$1 \cdot 10^{-7}$	m
Диэлектрическая проницаемость	$\epsilon_1 + i\epsilon_2$	$2.5 + i1.1$	
Коэффициент преломления	n	1.6	
Показатель поглощения	κ	$7.5 \cdot 10^6$	1/m
Намагниченность насыщения	M_S	$1.9 \cdot 10^6$	A/m
Величина вектора гирации	G	0.076	

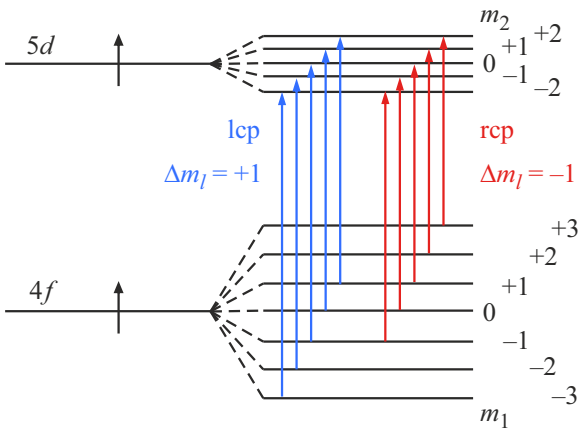

Рис. 6. Схема атомарного электронного перехода $4f_\uparrow \to 5d_\uparrow$ при возбуждении циркулярнополяризованным светом с правилами отбора $\Delta m_l = +1$ и -1 для левой (lcp) и правой циркулярной поляризации (rcp), соответственно [36,38].

мой $\mathbf{H}_{\text{eff}}$ и индуцированного лазером магнитного поля $\mathbf{H}'$ ($\mathbf{H}^{\text{IFE}}$ для ОЭФ или $\mathbf{H}^{\text{OOE}}$ для ЭОО).

Возможные механизмы эффекта оптической ориентации в EuO обсуждались в работе [33]. Оптическое поглощение в EuO обусловлено электронными переходами из $4f$-оболочки в зону проводимости d-типа, т.е. $4f^7(^8\text{S}_{7/2})5d^0 \to 4f^6(^7\text{F}_J)5d^1(\text{t}_{2g})$ [34]. Анализ правил отбора для этого процесса показал, что вероятность оптического перехода зависит от поляризации поглощенного света и ориентации спина электрона в начальном и конечном состояниях [35]. При рассмотрении электронного перехода $4f^7 5d^0 \to 4f^6 5d^1$ в EuO необходимо учитывать расщепление электронных состояний в кристаллическом электрическом поле, обменное расщепление, спин-орбитальное расщепление и эффект Зеемана в магнитном поле [29,36,37]. Несмотря на сложность электронной структуры EuO, многоэлектронный матричный элемент перехода $4f^7 5d^0 \to 4f^6 5d^1$ эквивалентен единичному электронному матричному элементу [38] и формально соответствует атомарному переходу $4f_\uparrow \to 5d_\uparrow$ [36]. На рис. 6 показана схема для перехода $4f_\uparrow \to 5d_\uparrow$ с учетом знака циркулярной поляризации света.

Выражение для фотоиндуцированной намагниченности $\mathbf{M}^{\text{OOE}}$ в EuO, возникающей за счет ЭОО, имеет относительно простую форму [20]:

$$M^{\text{OOE}} = \frac{c\epsilon_0 g\sqrt{J(J+1)}\mu_B t_p}{nl\hbar\omega}\left(1 - e^{-\kappa l}\right)E^2, \qquad (6)$$

где c — скорость света в вакууме, ϵ_0 — электрическая постоянная, g — g-фактор электрона, J — полный угловой момент $5d^1$-электрона, n — коэффициент преломления, κ — показатель поглощения EuO, l — толщина образца, $\hbar\omega$ — энергия фотона, μ_B — магнетон Бора, E — электрическое поле электромагнитной волны. Эволюцию ЭОО во времени после действия на образец EuO лазерного импульса луча накачки можно смоделировать с помощью простой затухающей функции:

$$A(t) = A_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right), \qquad (7)$$

где τ_s — время жизни спина. Эта функция фактически описывает изменение во времени магнитного поля Вейсса за счет ЭОО $H^{\text{OOE}} = A(t)\lambda M^{\text{OOE}}/\mu_0$ (см. рис. 5, a), которое влияет на магнитный момент f-электронной системы и приводит к появлению фотоиндуцированной намагниченности M^{OOE}. Это влияние происходит посредством сильного обменного взаимодействия с обменным интегралом $J^{\text{df}} \sim 0.1$ eV [37,39] между возбужденным $5d^1$-электроном и $4f$-электронами иона Eu^{2+} с параметром λ [40,41]. Другими словами, магнитное поле H^{OOE} воздействует на $4f$-электрон в течение времени жизни спина τ_s возбужденных $5d$-электронов.

Проведено теоретическое моделирование, основанное на численном решении уравнения Ландау-Лифшица (1) с использованием функции временного поведения эффективного магнитного поля $\mathbf{H}^*_{\text{eff}}$, индуцированного полем световой волны $\mathbf{H}'$ за счет ЭОО (см. рис. 5, a, уравнение (6)) или ОЭФ (рис. 5, c, уравнения (4) и (5)). Результаты расчетов временной эволюции z-составляющей магнитного момента системы f-электронов представлены на рис. 5, d для ЭОО и рис. 5, e для ОЭФ. Для оценки величины z-компоненты намагниченности за счет ЭОО и ОЭФ были использованы физические параметры образца EuO, приведенные в таблице. Из результатов расчета следует, что величины M_z^{OOE} и M_z^{IFE}

существенно различаются. Для магнитного поля с индукцией 200 mT отношение их амплитуд имеет большое значение $M_z^{OOE}/M_z^{IFE} \sim 40$, что показывает абсолютное преимущество эффекта ЭОО по сравнению с ОЭФ при воздействии на EuO фемтосекундных лазерных импульсов на выбранной длине волны. Моделирование временной эволюции z-компоненты намагниченности, вызваемой ЭОО или ОЭФ, обнаруживает принципиальное различие в начальных фазах прецессии намагниченности. Начальная фаза прецессии намагниченности за счет ЭОО является косинусоидальной, а за счет ОЭФ — синусоидальной. Данный вывод, сделанный на основе теоретического моделирования, обеспечивает дополнительную поддержку механизма запуска прецессии намагниченности в пленках EuO. Рассчитанные значения фотоиндуцированной намагниченности за счет ЭОО хорошо воспроизводят экспериментальные данные (см. рис. 4, *a*).

В настоящей работе использована геометрия на пропускание, что является важным преимуществом по отношению к измерениям в геометрии на отражение [20] и позволяет оценить параметры пленок EuO, существенные при возбуждении прецессии намагниченности лазерными импульсами. На основе подгонки теоретической модели и эксперимента можно получить величины для скорости затухания колебаний намагниченности α и времени жизни спина τ_s возбужденных $5d$-электронов. Для этого можно использовать результаты измерений в магнитном поле с индукцией 200 mT. Анализ результатов показал, что скорость релаксации намагниченности $\alpha \sim 0.02$, а время жизни спина τ_s, то есть время, в течение которого фотовозбужденные $5d$-электроны сохраняют свое спиновое состояние, оказалось равным ~ 30 ps. Это значение хорошо согласуется с литературными данными для других халькогенидов европия, например, EuTe и EuSe, где τ_s также составляет десятки пикосекунд [42,43]. Эффективное магнитное поле Вейсса, создаваемое ЭОО, действует значительно дольше ($\propto \tau_s$), чем эффективное поле, возникающее за счет ОЭФ, длительность которого сравнима с длительностью лазерного импульса ($\propto \varrho$). Этот факт определяет ЭОО как механизм запуска прецессии намагниченности в пленках EuO за счет фемтосекундных лазерных импульсов, что подтверждает вывод, сделанный в работе [20].

4. Фотоиндуцированная динамика магнитных поляронов

В этом разделе рассмотрена динамика фотоиндуцированного эффекта Фарадея (ФЭФ) в EuO в диапазоне времен от нескольких пикосекунд до микросекунд при температурах немного выше температуры Кюри $T_C = 69.8$ K [15]. В данном эксперименте внешнее магнитное поле было приложено по нормали к плоскости образца. Для ферромагнитных материалов эффект Фарадея с учетом фотоиндуцированного намагничивания может быть записан следующим образом:

$$\Theta_F = V[M_s + M_{ph}(I)]l, \tag{8}$$

где V — постоянная Верде, M_{ph} — фотоиндуцированная намагниченность, I — интенсивность света накачки. Вклад, связанный со спонтанной намагниченностью M_s описывает обычный эффект Фарадея, а вклад, связанный с намагниченностью, индуцированной световым воздействием M_{ph}, соответствует ФЭФ.

На рис. 7, *a* представлена зависимость ФЭФ от времени задержки между импульсами накачки и зондирования, рис. 7, *b*, *c* и *d* показывают зависимости ФЭФ от магнитного поля при различных временных задержках. Важно отметить, что зависимости ФЭФ от магнитного поля сильно эволюционируют. Так, при небольшом времени задержки 8 ps ФЭФ является почти линейной функцией от внешнего магнитного поля B. При временной задержке 35 ps в зависимости ФЭФ(B) можно заметить поведение, соответствующее сумме линейной функции и отрицательной зависимости S-типа. При задержке 2.8 ns в зависимости ФЭФ(B) наблюдается положительная зависимость S-типа.

S-образная форма наблюдаемых при большой задержке зависимостей ФЭФ(B) позволяет заключить, что ФЭФ при температурах несколько выше температуры Кюри определяется образованием и динамикой МП, индуцируемых светом в EuO. Обсудим процесс формирования фотоиндуцированных МП в результате электронного перехода $4f^7 5d^0 \to 4f^6 5d^1$, а также процессы релаксации в зоне проводимости EuO. Полный гамильтониан системы носителей заряда и магнитных моментов в EuO можно записать в виде суммы слагаемых [44,45]:

$$H = H_{\mathrm{k}} + H_{\mathrm{C}} + H_{\mathrm{ff}} + H_{\mathrm{df}}, \tag{9}$$

где H_{k} обозначает оператор кинетической энергии зонных электронов, H_{C} — оператор кулоновской энергии фотовозбужденной электронно-дырочной пары, H_{ff} — гамильтониан Гейзенберга для магнитной решетки спинов f-электронов, H_{df} — оператор обменной энергии между спином $5d^1$-электрона в зоне проводимости и локализованными спинами f-электронов. Гамильтониан H_{ff} связан с двумя обменными интегралами $J_1 \sim 0.09$ meV и $J_2 \sim 0.01$ meV [45], которые определяют ферромагнитный порядок системы спинов f-электронов в EuO. Для $5d^1$ электрона, кулоновски связанного с $4f^6$ дыркой и перекрывающего n Eu^{2+} ионов, обменная энергия может быть записана в следующем виде [46]

$$H_{\mathrm{df}} = -2\sum_i^n \frac{J^{\mathrm{df}}}{n}\mathbf{s}\cdot\mathbf{S}_i, \tag{10}$$

где $\mathbf{s}$ — спин $5d^1$-электрона, $\mathbf{S}_i$ — спин $4f$-электронов i-иона Eu^{2+}. Обменная энергия H_{df} определяет достаточно сильную связь между оптически возбуждаемыми электронами в $5d$ зоне проводимости и $4f$-электронами

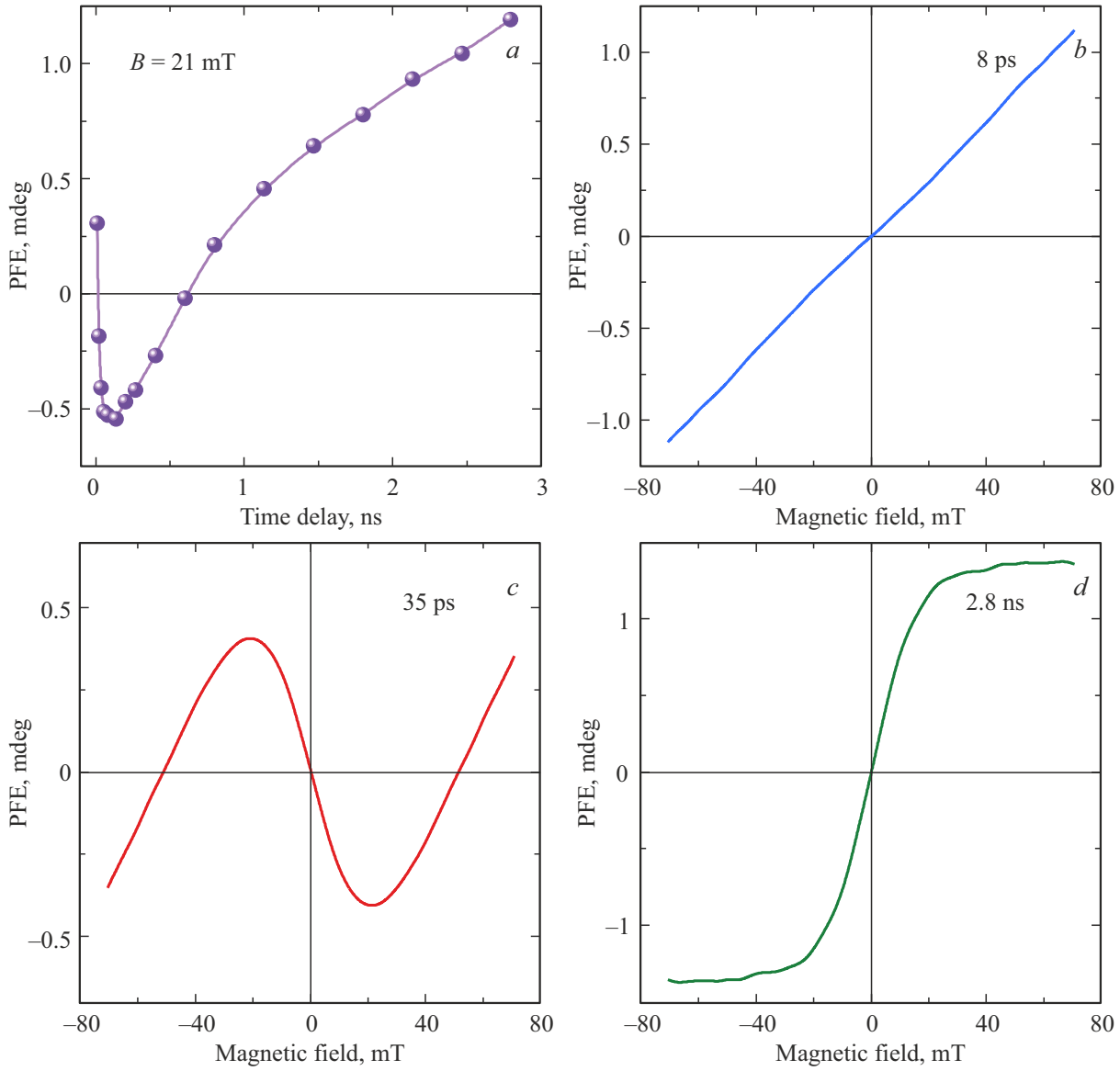

Рис. 7. (*a*) Динамика ФЭФ с временным разрешением, экспериментальные данные показаны точками, линия — сплайн-аппроксимация; (*b*), (*c*) и (*d*) Зависимости ФЭФ от магнитного поля при различных временных задержках. Измерения проводились при температуре $T = 70.8$ K [15].

валентной зоны, что имеет принципиальное значение для образования МП в халькогенидах европия [45,47].

В EuO лазерный импульс с интенсивностью $0.5\,\mathrm{mJ/cm^2}$ создает в зоне проводимости концентрацию электронов $\sim 10^{17}\,\mathrm{cm^{-3}}$. Намагниченность разреженной системы изолированных электронов со случайным направлением спинов хорошо описывается следующим выражением [48]:

$$m_z = M_0 B_J(x). \tag{11}$$

M_0 является максимальной величиной намагниченности, $B_J(x)$ — функция Бриллюэна и J является полным угловым моментом электрона, $x = m_0 B_z / k_B T$ — безразмерное отношение магнитной энергии к тепловой, где $m_0 = g\mu_B J$ — магнитный момент отдельного электрона, B_z — z-компонента индукции внешнего магнитного поля, k_B — постоянная Больцмана, T — температура. По мере формирования полярона его магнитный момент значительно возрастает. Изолированные поляроны со случайным направлением магнитного момента можно рассматривать как суперпарамагнитную систему, намагниченность которой хорошо описывается таким образом [48]:

$$m_z = M_0 L(x). \tag{12}$$

$L(x) = \coth(x) - \frac{1}{x}$ является функцией Ланжевена, где $x = \mu_{pol} B_z / k_B T$, μ_{pol} — магнитный момент отдельного полярона.

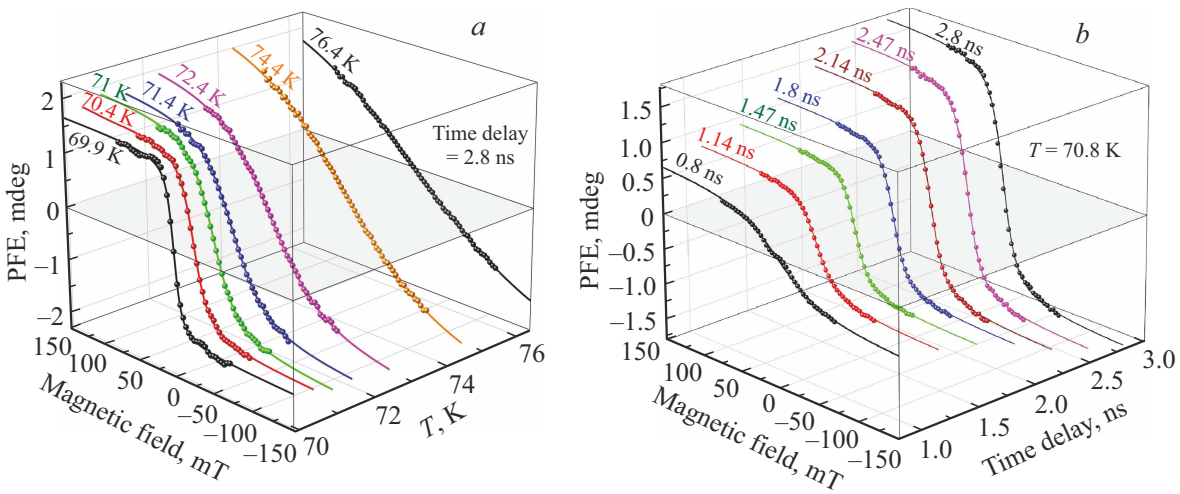

Рис. 8. (*a*) Зависимости ФЭФ от магнитного поля при различных температурах и временной задержке 2.8 ns. (*b*) Зависимости ФЭФ от магнитного поля при различных временных задержках и температуре $T = 70.8$ K.

На рис. 8, *a* представлены зависимости ФЭФ от магнитного поля в EuO в диапазоне температур 70–76.4 K, что несколько выше температуры Кюри. На рис. 8, *b* показаны зависимости ФЭФ от магнитного поля при различных временных задержках. Систематические изменения формы магнитных зависимостей легко прослеживаются в зависимости от временной задержки. Зависимости ФЭФ от магнитного поля имеют *S*-образный вид, соответствующий зависимости функции Ланжевена при фиксированной температуре. Магнитный момент полярона может быть рассчитан на основе уравнения (12) с учетом линейного вклада уравнения (11) и фактора размагничивания пленки EuO [15]. Видно хорошее соответствие между экспериментальными данными (точки на рис. 8) и их аппроксимацией (линии на рис. 8). Максимальный магнитный поляронный момент, равный $175 \cdot 10^3 \mu_B$, измерен при $T = 70$ K и временной задержке 2.8 ns, а также при $T = 70.8$ K и временной задержке 0.3–0.4 ns [15].

На рис. 9, *a* показана схема оптического возбуждения из основного состояния $4f$-зоны в возбужденное состояние $5d$-зоны в EuO. Магнитный полярон формируется возбужденным $5d^1$-электроном, связанным обменным взаимодействием с интегралом J^{df} с $4f$-электронами. Возбужденный $5d^1$-электрон реализует полный ферромагнитный порядок внутри МП [45]. Радиус МП в EuO можно оценить, используя данные для намагниченности одного иона Eu^{2+} ($7\mu_B$) [49]. Экспериментально полученный максимальный магнитный момент $\mu_{pol} \sim 175 \cdot 10^3 \mu_B$ дает по этой оценке поляронный радиус, равный приблизительно 11 постоянным решетки EuO при учете того, что в одной элементарной ячейке находится четыре иона Eu^{2+} [15]. Теория фотоиндуцированных МП в халькогенидах европия предсказывает появление поляронов с магнитным моментом в десятки тысяч магнетонов Бора для EuO [41]. Согласно этой теории магнитный момент фотоиндуцированного МП должен показывать резкий максимум при температурах, близких к температуре Кюри. Для поляронов в ферромагнитном полупроводнике существуют два качественно различных стабильных состояния по энергии [50]. В одном случае носитель делокализован на несколько элементарных ячеек, что необходимо для образования фотоиндуцированных спиновых поляронов большого радиуса с гигантским магнитным моментом. В другой ситуации носитель локализован до минимального размера вплоть до одной элементарной ячейки. Этого достаточно только для образования поляронов малого радиуса, которые практически не видны с помощью используемой в данной работе техники измерения. С повышением температуры при $T > T_C$ поляроны большого радиуса быстро распадаются на поляроны малого радиуса [51]. Это качественно подтверждается изменением вида зависимостей ФЭФ от магнитного поля при различных температурах. Узкий максимум для ФЭФ также наблюдался в пленках сульфида европия EuS в области температуры Кюри [52] и для фотоиндуцированного эффекта Керра в объемном EuS [53].

Зависимость магнитного момента полярона от времени экспериментально исследована в работе [15]. Формирование полярона происходит на временах в несколько сотен пикосекунд. Обсудим временную иерархию различных процессов при формировании фотоиндуцированных МП (см. рис. 9, *b*). После фотовозбуждения $5d^1$-электроны начинают релаксировать и заполняют верхний энергетический минимум спиновой подзоны со спином ↓. Эти электроны начинают образовывать магнитные поляроны в интервале времени 0–0.2 ns. Наблюдается ФЭФ в виде суммы линейного участка функции Бриллюэна для электронов, не успевших образовать МП, и отрицательной зависимости функции Ланжевена *S*-типа для электронов, образовавших МП (см. рис. 9, *c*). При последующей релаксации в интервале времени 0.2–1 ns электроны могут достичь

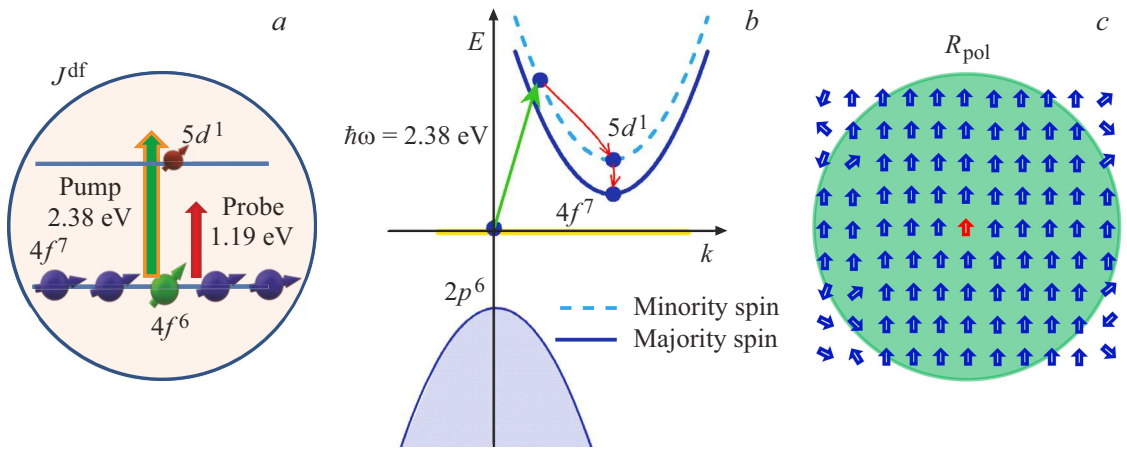

Рис. 9. (a) Схема электронного перехода $4f^7 5d^0 \to 4f^6 5d^1$ в EuO в экспериментах по оптической накачке и зондированию. (b) Оптическое возбуждение на E-k диаграмме, отвечающее переносу электрона из $4f$-валентной зоны в $5d$-зону проводимости и последовательный процесс релаксации электронов в спиновые подзоны $\downarrow$ и $\uparrow$. (c) Магнитный полярон с радиусом R_{pol}, образованный возбужденным $5d^1$-электроном, красная стрелка показывает спин $5d^1$-электрон иона Eu^{2+}, синие стрелки — спины $4f$-электронов.

нижнего минимума спиновой подзоны со спином $\uparrow$, соответствующего состоянию спинов, направленных вдоль магнитного поля B. Экспериментально это видно как плавный переход зависимости ФЭФ(B) от отрицательного к положительному S-образному поведению, т.е. происходит обращение петли гистерезиса. Магнитный момент МП линейно увеличивается до $175 \cdot 10^3 \mu_B$ при 0.3 ns, затем момент МП уменьшается до $90 \cdot 10^3 \mu_B$ за 1 ns, когда электроны $5d^1$ релаксируют до нижнего минимума, соответствующего состоянию со спином $\uparrow$. Магнитный момент МП стабилизируется на значении $90 \cdot 10^3 \mu_B$ в интервале времени 1–2.8 ns. ФЭФ определяется произведением числа фотоиндуцированных поляронов на его магнитный момент, что определяет рост ФЭФ при увеличении временной задержки. В работе [15] было определено время релаксации ФЭФ, связанное со временем жизни поляронов в EuO и равное $5\,\mu$s. Данная величина хорошо согласуется с временами жизни поляронов, экспериментально определенными для других халькогенидов европия — $1.6\,\mu$s в EuSe [54], $13\,\mu$s в EuS [53] и $15\,\mu$s в EuTe [43].

5. Заключение

Методом накачки и зондирования исследована фотоиндуцированная динамика магнитных состояний в тонких эпитаксиальных пленках магнитного полупроводника EuO. При температурах существенно ниже температуры Кюри механизмом запуска прецессии намагниченности является эффект оптической ориентации, что подтверждает вывод, сделанный в работе [20]. При воздействии лазерных импульсов с круговой поляризацией происходит оптическая ориентация спина через электронный переход $4f^7 5d^0 \to 4f^6 5d^1$. За счет сильного обменного взаимодействия возникает эффективное поле Вейсса, действующее на магнитный момент f-электронной системы, что приводит к появлению фотоиндуцированной намагниченности. Численное моделирование на основе решения уравнения Ландау-Лифшица показало, что вклад от ЭОО в 40 раз превышает вклад от ОЭФ. Это связано с тем, что создаваемое ЭОО поле Вейсса действует существенно дольше, чем эффективное поле, возникающее за счет ОЭФ, поэтому ЭОО доминирует в запуске прецессии намагниченности.

В области температур выше T_C фотовозбуждение EuO светом с энергией выше ширины запрещенной зоны приводит к образованию магнитных поляронов с временем жизни $5\,\mu$s и аномально большим магнитным моментом, достигающим $175 \cdot 10^3 \mu_B$, что является рекордом среди всех известных материалов [15]. Динамика поляронов охватывает диапазон от пикосекунд до микросекунд и демонстрирует сложную релаксационную картину, объясняемую последовательной релаксацией электрона в зоне проводимости. В первые десятки пикосекунд 0–0.2 ns происходит формирование суперпарамагнитного ансамбля поляронов вокруг фотовозбужденных $5d$-электронов, занимающих верхний энергетический минимум спиновой подзоны со спином $\downarrow$. Затем, в интервале времени 0.2–1 ns, по мере релаксации фотовозбужденных электронов в нижний энергетический минимум спиновой подзоны со спином $\uparrow$ происходит обращение петли гистерезиса, наблюдаемого с помощью ФЭФ.

Выявленные механизмы управления спиновым порядком в EuO представляют собой новый подход в области оптомагнетизма, что может найти практическое применение в устройствах спинтроники и оптоэлектроники.

Благодарности

Авторы выражают свою признательность группе В.Г. Сторчака (Национальный исследовательский центр „Курчатовский институт“, Москва) за плодотворное сотрудничество.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Российского Научного Фонда (грант № 24-12-00348).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] A.V. Kimel, A.M. Kalashnikova, A. Pogrebna, A.K. Zvezdin. Phys. Rep. **852**, 1 (2020).
[2] A. El-Ghazaly, J. Gorchon, R.B. Wilson, A. Pattabi. J. Bokor. J. Magn. Magn. Mater. **502**, 166478 (2020).
[3] Л.П. Питаевский. ЖЭТФ, **39**, *5*, 1450 (1961).
[4] A.V. Kimel, A. Kirilyuk, P.A. Usachev, R.V. Pisarev, A.M. Balbashov, Th. Rasing. Nature **435**, 655 (2005).
[5] A. Kirilyuk, A.V. Kimel, Th. Rasing. Rev. Mod. Phys. **82**, 2731 (2010).
[6] P.S. Pershan, J.P. van der Ziel, L.D. Malmstrom. Phys. Rev. **143**, 574 (1966).
[7] A.H.M. Reid, A.V. Kimel, A. Kirilyuk, J.F. Gregg, Th. Rasing. Phys. Rev. Lett. **105**, 107402 (2010).
[8] D. Popova, A. Bringer, S. Blügel. Phys. Rev. B **85**, 094419 (2012).
[9] F. Hansteen, A. Kimel, A. Kirilyuk, Th. Rasing. Phys. Rev. B **73**, 014421 (2006).
[10] L.A. Shelukhin, V.V. Pavlov, P.A. Usachev, P.Yu. Shamray, R.V. Pisarev, A.M. Kalashnikova. Phys. Rev. B **97**, 014422 (2018).
[11] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, J.-Y. Bigot. Phys. Rev. Lett. **76**, 4250 (1996).
[12] F. Meyer, B.P. Zakharchenya (Eds.). Optical orientation, North Holland, Amsterdam, (1984), 523 p.
[13] A. Kastler. J. Phys. Radium **11**, 255 (1950).
[14] P. Němec, E. Rozkotová, N. Tesarová, F. Trojánek, E. De Ranieri, K. Olejník, J. Zemen, V. Novák, M. Cukr, P. Malý, T. Jungwirth. Nat. Phys. **8**, 411 (2012).
[15] P.A. Usachev, V.N. Kats, L.A. Shelukhin, V.V. Pavlov, D.V. Averyanov, I.S. Sokolov, O.E. Parfenov, O.A. Kondratev, A.N. Taldenkov, A.V. Inyushkin, A.M. Tokmachev, V.G. Storchak. Mater. Horiz. **12**, 512 (2025).
[16] V.N. Kats, S.G. Nefedov, L.A. Shelukhin, P.A. Usachev, D.V. Averyanov, I.A. Karateev, O.E. Parfenov, A.N. Taldenkov, A.M. Tokmachev, V.G. Storchak, V.V. Pavlov. Appl. Mater. Today **19**, 100640 (2020).
[17] J.C. Suits, K. Lee. J. Appl. Phys. **42**, 3258 (1971).
[18] M. Matsubara, A. Schroer, A. Schmehl, A. Melville, C. Becher, M. Trujillo-Martinez, D.G. Schlom, J. Mannhart, J. Kroha, M. Fiebig. Nat. Commun. **6**, 6724 (2015).
[19] F. Formisano, R. Medapalli, Y. Xiao, H. Ren, E.E. Fullerton, A.V. Kimel. J. Magn. Magn. Mater. **502**, 166479 (2020).
[20] V.N. Kats, L.A. Shelukhin, P.A. Usachev, D.V. Averyanov, I.A. Karateev, O.E. Parfenov, A.N. Taldenkov, A.M. Tokmachev, V.G. Storchak, V.V. Pavlov. Nanoscale **15**, 2828 (2023).
[21] V. Goian, R. Held, E. Bousquet, Y. Yuan, A. Melville, H. Zhou, V. Gopalan, P. Ghosez, N.A. Spaldin, D.G. Schlom, S. Kamba. Commun. Mater. **1**, 74 (2020).
[22] S. Sugahara, M. Tanaka. US patent US7671433B2 (2010).
[23] L.D. Landau, E.M. Lifshits. Phys. Z. Sowjet. **8**, 153 (1935).
[24] Г.В. Скроцкий. УФН **144**, *4*, 681 (1984).
[25] M. Farle. Rep. Prog. Phys. **61**, 755 (1998).
[26] R.S. Hughes, G.E. Everett, A.W. Lawson. Phys. Rev. B **9**, 2394 (1974).
[27] Y.R. Shen. The principles of nonlinear optics, Wiley-Interscience, New York, (1984).
[28] M.A. Kozhaev, A.I. Chernov, D.A. Sylgacheva, A.N. Shaposhnikov, A.R. Prokopov, V.N. Berzhansky, A.K. Zvezdin, V.I. Belotelov. Sci. Rep. **8**, 11435 (2018).
[29] J. Schoenes. J. Magn. Soc. Jpn. **11** (Suppl. S1), 99 (1987).
[30] G. Güntherodt. Phys. Condens. Matter **18**, 37 (1974).
[31] A.K. Zvezdin, V.A. Kotov. Modern magnetooptics and magnetooptical materials. CRC Press, Boca Raton, (1997).
[32] J.P. van der Ziel, P.S. Pershan, L.D. Malmstrom. Phys. Rev. Lett. **15**, 190 (1965).
[33] M.M. Afanas'ev, M.E. Kompan, I.A. Merkulov. Sov. Phys. JETP **44**, 1086 (1976).
[34] P. Wachter. Phys. Kond. Mater. **8**, 80 (1968).
[35] J.O. Dimmock, J. Hanus, J. Feinleib. J. Appl. Phys. **41**, 1088 (1970).
[36] P. Fumagalli, J. Schoenes. Magneto-optics: an introduction, De Gruyter, Berlin, Boston, (2021).
[37] T. Kasuya. CRC Critical Reviews on Solid State Sciences **3**, 131 (1972).
[38] A.B. Henriques, M.A. Manfrini, P.H.O. Rappl, E. Abramof. Phys. Rev. B **77**, 035204 (2008).
[39] G. Güntherodt. Phys. Cond. Matter **18**, 37 (1974).
[40] S. Blundell. Magnetism in condensed matter, Oxford University Press, Oxford, (2001).
[41] S.C.P. van Kooten, X. Gratens, A.B. Henriques. Phys. Rev. B **103**, 035202 (2021).
[42] V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, S.G. Nefedov, I.A. Akimov, D.R. Yakovlev, M. Bayer, A.B. Henriques, P.H.O. Rappl, E. Abramof. J. Appl. Phys. **123**, 193102 (2018).
[43] A.B. Henriques, A.R. Naupa, P.A. Usachev, V.V. Pavlov, P.H.O. Rappl, E. Abramof. Phys. Rev. B **95**, 045205 (2017).
[44] P. Kuivalainen, J. Sinkkonen, T. Stubb. Phys. Stat. Sol. (b) **104**, 299 (1981).
[45] A. Mauger. Phys. Rev. B **27**, 2308 (1983).
[46] J.B. Torrance, M.W. Shafer, T.H. McGuire. Phys. Rev. Lett. **29**, 1168 (1972).
[47] E.L. Nagaev. Phys. Stat. Sol. (b) **145**, 11 (1988).
[48] J.M.D. Coey. Magnetism and magnetic materials, Cambridge University Press, Cambridge, (2009).
[49] P. Wachter. Europium chalcogenides: EuO, EuS, EuSe and EuTe, in Handbook on the physics and chemistry of rare earths, K.A. Gschneider, L.R. Eyring (Eds.), North-Holland, Amsterdam, (1979), P. 507.
[50] D. Emin. Polarons, Cambridge University Press, (2012).
[51] D. Emin. Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **494**, 163 (1998).
[52] X. Gratens, Y. Ou, J.S. Moodera, P.H.O. Rappl, A.B. Henriques. Appl. Phys. Lett. **116**, 152402 (2020).
[53] П.А. Усачёв, В.Н. Кац, В.В. Павлов. ФТТ **62**, *9*, 1454 (2020).
[54] A.B. Henriques, X. Gratens, P.A. Usachev, V.A. Chitta, G. Springholz. Phys. Rev. Lett. **120**, 217203 (2018).

Редактор Т.Н. Василевская