

Спектроскопия спиновых шумов: три сюжета

© В.С. Запасский, Г.Г. Козлов, И.И. Рыжов

Санкт-Петербургский государственный университет,
198504 Санкт-Петербург, Россия

e-mail: i.ryzhov@spbu.ru

Поступила в редакцию 07.09.2022 г.

В окончательной редакции 22.09.2022 г.

Принята к публикации 22.09.2022 г.

Эффект магнитного резонанса в шумах фарадеевского вращения, впервые продемонстрированный на атомной системе более 40 лет назад, положил начало новому научному направлению — спектроскопии спиновых шумов, которое активно развивается последние 20 лет. Наиболее популярными объектами исследований в настоящее время служат атомные и полупроводниковые парамагнетики, а предметом исследований — спектроскопия магнитного резонанса, спиновая динамика, оптическая спектроскопия, спектроскопия шумов поляризации света. Быстрое развитие этого нового научного направления, лежащего на стыке оптики и радиоспектроскопии, постоянно расширяет область его применимости и открывает новые возможности использования в экспериментальной физике. В работе приводятся несколько эпизодов, представляющих собой важные этапы развития спектроскопии спиновых шумов последних лет. Работа была подготовлена в качестве доклада на XV Российской конференции по физике полупроводников.

Ключевые слова: спектроскопия спиновых шумов, магнитный резонанс, оптическая анизотропия, неоднородное уширение.

DOI: 10.21883/OS.2022.11.53772.4095-22

1. Введение

Спектроскопия спиновых шумов или спектроскопия спиновых флуктуаций (ССФ) — это новое научное направление, сочетающее в себе спектроскопию магнитного резонанса со спектроскопией оптической. Идея регистрации спонтанных флуктуаций намагниченности, лежащая в основе ССФ, была впервые высказана Ф. Блохом в 1946 г. [1] и реализована экспериментально в 1981 г. на парах щелочного металла [2]. Спиновые шумы (или шумы намагниченности) в работе [2] регистрировались по шумам фарадеевского вращения, высокая чувствительность детектирования которых обеспечивалась использованием техники лазерной поляриметрии [3,4]. Магнитный резонанс наблюдался как пик в спектре мощности шумов фарадеевского вращения (ФВ) на частоте спиновой прецессии (на частоте Лармора). При этом важно, что измерение частоты спиновой прецессии в ССФ производится без ее возбуждения внешним переменным полем. Такой „невозмущающий“ характер измерительной процедуры радикальным образом отличает ССФ от всех известных методов детектирования магнитного резонанса, в которых сам термин „резонанс“ подразумевает совпадение частоты внешнего воздействия с собственной частотой прецессии свободного спина.

Обнаруженный эффект магнитного резонанса в спектре шумов ФВ первоначально рассматривался лишь как удачная экспериментальная иллюстрация к флуктуационно-диссипационной теореме [5], и никакого прикладного значения ему не придавалось. Значитель-

ную популярность спектроскопия спиновых шумов завела лишь в начале нынешнего века после ее успешного применения к полупроводниковым структурам [6,7] и после радикального повышения чувствительности метода за счет замены спектроанализаторов сканирующего типа на их аналоги на базе быстрого преобразования Фурье [8–10]. К настоящему времени уже накоплен большой опыт применения ССФ к атомным и полупроводниковым системам и обнаружен ряд удивительных возможностей метода.

Дополнительный потенциал метода ССФ реализуется в условиях оптического резонанса, когда световой пучок выводит спин-систему из состояния термодинамического равновесия [11–13]. В то же время, важная особенность шумовой спектроскопии состоит в том, что этот метод, не подразумевающий оптической нелинейности среды, зачастую проявляет свойства, более типичные для нелинейной оптики [14]. Так, шумовой сигнал обнаруживает зависимость от плотности оптической мощности пробного пучка, что было использовано для реализации оптической версии трехмерной томографии объемных полупроводниковых структур [15]. Корреляционно-статистические закономерности формирования шумового сигнала делают ССФ чувствительной к однородной ширине неоднородно уширенных оптических переходов [16] и позволяют не только ставить эксперименты типа „накачка—зонд“ [17,18], но и избежать типичного для регулярного отклика подавления стохастического сигнала гирации в двулучепреломляющих средах [19].

В настоящей работе мы рассмотрим три сюжета, которые, как нам представляется, существенным образом

повлияли на развитие спектроскопии спиновых шумов последних лет. Первый из них связан с чувствительностью спиновых шумов к характеру уширения оптического перехода, второй касается применимости метода к оптически анизотропным средам, а третий относится к нарушению общепринятых закономерностей наблюдения спиновой прецессии в средах с анизотропными центрами. Все перечисленные сюжеты представляют общий интерес для спектроскопии спиновых шумов, однако оказались чрезвычайно актуальными в применении к кристаллам с редкоземельными (РЗ) ионами и иллюстрируются на примере этих систем.

2. Формирование сигнала спинового шума на переходе с неоднородным уширением

2.1. Общее описание эффекта

Спектральный ход парамагнитного эффекта Фарадея в области изолированной спектральной линии приближенно совпадает со спектром соответствующего вклада линии в показатель преломления среды. При наличии нескольких спектральных линий полный спектр фарадеевского вращения представляется суммой отдельных вкладов — независимо от происхождения этих линий. В оптических спектрах шумов фарадеевского вращения важную роль играют кросс-корреляционные характеристики отдельных вкладов, и процесс формирования общего спектра мощности шума перестает быть однозначным. Наиболее выразительное проявление этой специфики ССФ было обнаружено при резонансных исследованиях неоднородно уширенных переходов.

Необычная форма оптического спектра мощности шума фарадеевского вращения была впервые обнаружена в работе [16] при резонансном зондировании ансамбля квантовых точек (In,Ga)As. Парадоксальным казался тот факт, что мощность шума ФВ достигала максимума в центре перехода, где величина регулярного ФВ обращалась в нуль. Более строгое теоретическое рассмотрение задачи показало, что, действительно, в том случае, когда однородная ширина перехода оказывается существенно меньше неоднородной и соседние спектральные пакеты контура линии флуктуируют независимым образом, мощность шума в каждой точке контура определяется лишь плотностью осцилляторов. В случае оптического перехода с однородным уширением ФВ флуктуирует скоррелированным образом по всему контуру линии, спектр мощности шума описывается квадратом спектра регулярного эффекта Фарадея и, очевидно, обращается в нуль в точке, где сам эффект Фарадея обращается в нуль.

Интересна эволюция спектра мощности шума ФВ в области оптического резонанса по мере снижения относительной однородной ширины перехода, т.е. по мере перехода от линии, уширенной однородно, к линии

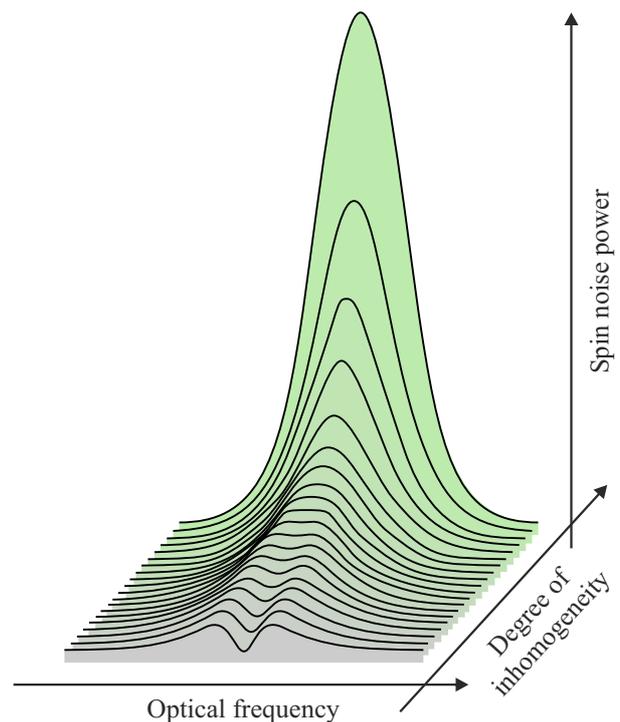


Рис. 1. Схематичное изображение эволюции оптического спектра мощности спиновых шумов по мере роста отношения неоднородной ширины оптического перехода к однородной.

с доминирующим неоднородным уширением. Ход этой эволюции представлен графически на рис. 1. Как видно из рисунка, провал в оптическом спектре мощности шума зарастает, когда однородная ширина составляет примерно половину ширины полной, а затем пиковая мощность шума растет, по мере роста отношения неоднородной ширины линии к однородной, практически неограниченно. В сопоставлении с мощностью шума на неоднородно уширенном переходе этот фактор усиления определяется отношением неоднородной ширины линии к однородной и в некоторых случаях может составлять много порядков величины. Именно этот эффект усиления спинового шума сыграл ключевую роль в применении ССФ к кристаллам с редкоземельными примесными ионами [20].

2.2. Приложение ССФ к кристаллам с РЗ примесями

Примесные ионы РЗ металлов в кристаллах, как известно, обнаруживают два существенно различных типа оптических переходов: (1) разрешенные межконфигурационные ($4f-5d$) переходы с широкими однородно уширенными полосами поглощения и мощной магнитооптической активностью и (2) относительно слабые, запрещенные по четности внутриконтинуальные ($f-f$) переходы с узкими линиями и невысокой магнитооптической активностью. Первоначально наиболее перспек-

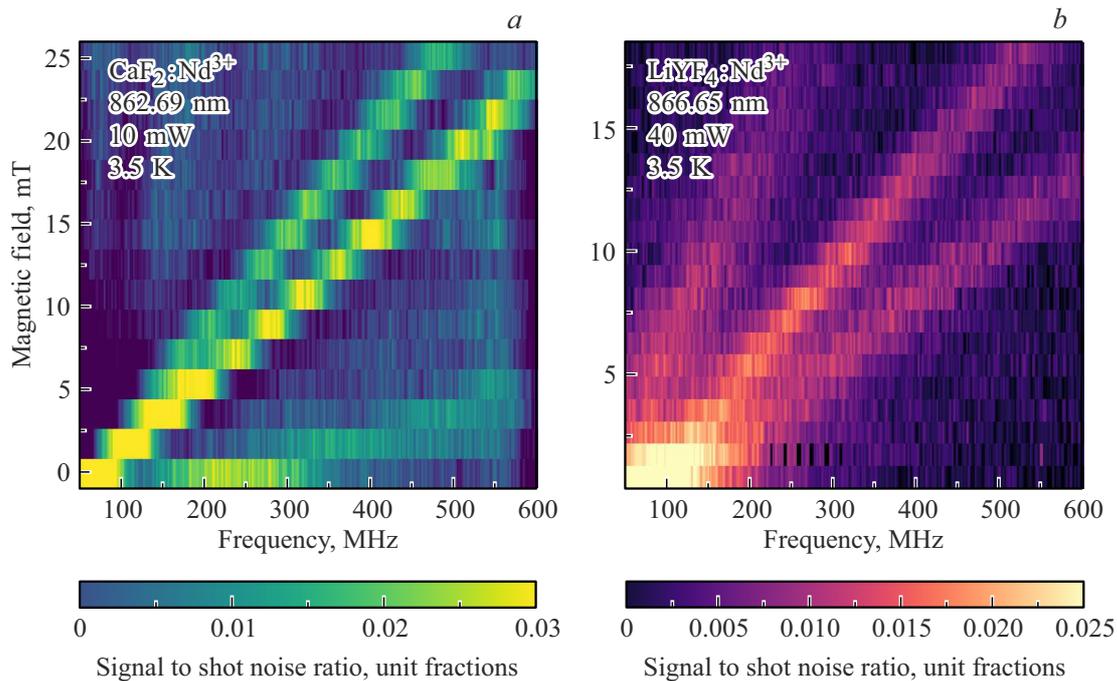


Рис. 2. Полевые зависимости спектров спиновых шумов ионов Nd^{3+} в кубическом кристалле CaF_2 (a) и в одноосном кристалле LiYF_4 (b). Ключевые параметры эксперимента приведены на панелях.

тивными объектами среди примесных РЗ систем считались кристаллы с двухвалентными РЗ ионами (Eu^{2+} , Dy^{2+} , Tm^{2+}), полосы межконфигурационных переходов которых располагаются в видимой области спектра. Однако численные оценки показывали, что даже в кристаллах с этими ионами вклад в ФВ в пересчете на один ион (или, точнее, сечение ФВ [21]) оказывался слишком малым для применения метода ССФ. Более внимательное рассмотрение, однако, показало, что малоэффективные на первый взгляд $f-f$ переходы с невысокой магнитооптической активностью являются в этом смысле наиболее перспективными. Действительно, так называемые узкие линии $f-f$ переходов имеют ширину масштаба долей cm^{-1} (обычно от 1 до 10 GHz). Существенно, однако, что это — результат неоднородного уширения переходов, связанного с флуктуациями локальных кристаллических полей, тогда как их однородная ширина может лежать в диапазоне kHz и даже их долей [22]. Поэтому, несмотря на относительно малый регулярный эффект Фарадея на $f-f$ переходах, упомянутый в предыдущем подразделе фактор усиления сигнала спинового шума может достигать 6–7 порядков величины, что делает такие системы чрезвычайно благоприятными для метода ССФ.

Результат первых успешных экспериментов, проведенных на кристалле флюорита, активированного трехвалентным ионом неодима, представлен на рис. 2, a. Существенно, что для реализации указанного выигрыша в сигнале спинового шума спектральная ширина пробного пучка должна быть меньше однородной ширины

линии. В наших экспериментах [19,20,23] в качестве источника пробного излучения использовался кольцевой перестраиваемый титан-сапфировый лазер с шириной линии генерации менее 1 MHz. Работа [20] открыла путь к применению ССФ к редкоземельным системам.

3. Применение ССФ к анизотропным кристаллам

В основе фарадеевского метода регистрации шумов намагниченности лежит допущение о пропорциональности ФВ намагниченности среды или, точнее, проекции намагниченности на направление распространения света. Такая картина формирования шумового сигнала определяет естественную схему наблюдения шумов намагниченности: пробный пучок, регистрирующий осцилляции поперечной компоненты намагниченности, должен быть направлен поперек приложенного внешнего поля (так называемая геометрия Фохта). Очевидно также, что при распространении пробного света вдоль приложенного магнитного поля (в геометрии Фарадея) проекция прецессирующей вокруг поля намагниченности не осциллирует, и сигнал спиновой прецессии наблюдаться не должен [24]. Такая стройная картина формирования сигнала ФВ и его шумов подразумевает, что намагниченность среды является единственным источником ее оптической анизотропии. Ситуация существенным образом меняется для оптически анизотропных сред, например низкосимметричных кристаллов. В таких средах свет теряет способность накапливать поворот плоскости

поляризации по мере распространения по кристаллу. Поляризационную эволюцию света в этом случае часто описывают прецессией вектора Стокса (или квазиспина) по сфере Пуанкаре вокруг эффективного магнитного поля, создаваемого линейным двулучепреломлением. В такой модели гирация среды обычно создает лишь малую ортогональную добавку к этому полю, практически не влияющую на поляризационную эволюцию света. Этот факт подавления регулярного фарадеевского вращения в оптически анизотропных средах, казалось бы, указывал на невозможность детектирования в таких средах и шумов ФВ, а следовательно, и на неприменимость к ним спектроскопии спиновых шумов. Оказалось, однако, что для пространственно некоррелированных флуктуаций гирации это не так. В работе [19] это было показано теоретически и подтверждено экспериментально на примере одноосных кристаллов CaWO_4 и LiYF_4 , легированных неодимом (рис. 2, *b*). Интересно, что несмотря на существенное искажение поляризации пробного света в процессе его распространения через кристалл, шумовой сигнал оказывается практически неподавленным и к тому же чрезвычайно слабо зависящим от азимута плоскости поляризации пробного пучка. Все эти закономерности находят свое объяснение в строгом теоретическом описании задачи и, самое главное, существенно расширяют возможности ССФ и круг ее потенциальных объектов. Для качественного понимания такого результата надо обратить внимание на различие процессов суммирования стохастических и регулярных поляризационных сигналов при наличии оптической анизотропии.

4. Схемы наблюдения шумов намагниченности в кристаллах с анизотропными центрами

Одна из стандартных задач спектроскопии магнитного резонанса состоит в выявлении структуры и симметрии анизотропных парамагнитных центров. В ССФ измерения частот спиновой прецессии обычно проводятся в магнитных полях, которые могут создаваться с помощью постоянных магнитов, расположенных вне низкотемпературного криостата. Изучение ориентационной зависимости спектров спинового шума при этом легко достигается механическим вращением постоянного магнита. Проведенные таким образом исследования спектров спиновых шумов кристаллов флюорита с примесными центрами Nd^{3+} позволили идентифицировать тип центра, а также установить некоторые инвариантные соотношения между частотами спиновых резонансов отдельных групп центров [23]. Существенно, что в этом эксперименте внешнее магнитное поле, по мере его вращения, последовательно проходило через геометрию Фойхта и геометрию Фарадея, не приводя к значительным изменениям амплитуды сигнала. Наши дальнейшие исследования кристаллов с анизотропными

центрами показали, что шумовые резонансы спиновой прецессии в них обычно не зануляются в геометрии Фарадея, что, как было отмечено в начале предыдущего раздела, представляется парадоксальным.

Простейшее объяснение этого нарушения стандартной схемы детектирования спиновых шумов можно представить в следующем виде. Рассмотрим анизотропный парамагнитный центр, произвольным образом ориентированный во внешнем магнитном поле, вдоль которого направлен пробный лазерный луч. Можно полагать, что в силу магнитной анизотропии центра действующее на него эффективное магнитное поле оказывается отклоненным от внешнего, и фарадеевская геометрия опыта нарушается. Это обстоятельство обуславливает появления шумового пика на ларморовой частоте при коллинеарной геометрии зондирующего пучка и магнитного поля. Однако последовательное решение модельной задачи о поляриметрических шумах, порождаемых системой парамагнитных ионов в кристаллической матрице в условиях резонансного зондирования, показывает, что описанная простая картина имеет лишь качественный смысл. Количественный анализ, предполагающий расчет флуктуаций гиротропной части тензора поляризуемости парамагнитных ионов в кристаллическом поле в условиях оптического резонанса, будет приведен в одной из наших будущих публикаций.

5. Заключение

Приведенный фрагмент последних достижений спектроскопии спиновых шумов, на наш взгляд, хорошо демонстрирует динамику развития этого научного направления. Неожиданным и парадоксальным результатом этих исследований явилось успешное применение спектроскопии шумов ФВ к оптически анизотропным системам, к которым спектроскопия регулярного ФВ практически неприменима. В дополнительном теоретическом обосновании нуждается тот факт, что в азимутальных зависимостях шумовых сигналов исследованные кристаллы практически полностью утрачивали свою анизотропию. Радикальное расширение возможностей спектроскопии спиновых шумов было также достигнуто за счет успешного применения этого метода к диэлектрическим кристаллам с РЗ ионами. Описанные в работе результаты исследований, на наш взгляд, вносят существенный вклад в развитие спектроскопии спиновых шумов и, несомненно найдут применение в оптических и радиоспектроскопических исследованиях парамагнитных сред.

Финансирование работы

Коллектив авторов выражает благодарность Санкт-Петербургскому государственному университету за поддержку работы (грант № 91182694). Экспериментальные исследования, представленные в разделах 2 и 3,

выполнены за счёт гранта Российского научного фонда № 21-72-10021 „Резонансная лазерная спектроскопия поляризационных флуктуаций“. Работа проводилась на площадке РЦ „Нанофотоника“ Научного парка СПбГУ.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] F. Bloch. *Phys. Rev.*, **70**, 460 (1946). DOI: 10.1103/PhysRev.70.460
- [2] Е. Б. Александров, В. С. Запасский. *ЖЭТФ*, **81** (1), 132 (1981).
- [3] Е. Б. Александров, В. С. Запасский. *Опт. и спектр.*, **41** (5), 855 (1976).
- [4] В. С. Запасский. *Журн. прикл. спектр.*, **37** (2), 184 (1982).
- [5] R. Kubo. *Reports on Progress in Physics*, **29** (1), 255 (1966).
- [6] M. Oestreich, M. Römer, R. J. Haug, D. Hägele. *Phys. Rev. Lett.*, **95**, 216603 (2005). DOI: 10.1103/PhysRevLett.95.216603
- [7] G. M. Müller, M. Oestreich, M. Römer, J. Hübner. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, **43** (2), 569 (2010). DOI: 10.1016/j.physe.2010.08.010
- [8] N. Thrane. *Technical Review*, **1**, (1979).
- [9] G. M. Müller, M. Römer, J. Hübner, M. Oestreich. *Applied Physics Letters*, **97** (19), 192109 (2010). DOI: 10.1063/1.3505342
- [10] S. A. Crooker, J. Brandt, C. Sandfort, A. Greilich, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Bayer. *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 036601 (2010). DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.036601
- [11] P. Glasenapp, N. A. Sinitsyn, L. Yang, D. G. Rickel, D. Roy, A. Greilich, M. Bayer, S. A. Crooker. *Phys. Rev. Lett.*, **113**, 156601 (2014). DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.156601
- [12] Q. Huang, D. S. Steel. *Phys. Rev. B*, **83**, 155204 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevB.83.155204
- [13] S. A. Crooker, L. Cheng, D. L. Smith. *Phys. Rev. B*, **79**, 035208 (2009). DOI: 10.1103/PhysRevB.79.035208
- [14] M. M. Glazov, V. S. Zapasskii. *Opt. Express*, **23** (9), 11713 (2015). DOI: 10.1364/OE.23.011713
- [15] M. Römer, J. Hübner, M. Oestreich. *Applied Physics Letters*, **94** (11), 112105 (2009). DOI: 10.1063/1.3098074
- [16] V. S. Zapasskii, A. Greilich, S. A. Crooker, Y. Li, G. G. Kozlov, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Bayer. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 176601 (2013). DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.176601
- [17] L. Yang, P. Glasenapp, A. Greilich, D. Reuter, A. D. Wieck, D. R. Yakovlev, M. Bayer, S. A. Crooker. *Nature Communications*, **5**, (2014).
- [18] D. Roy, L. Yang, S. A. Crooker, N. A. Sinitsyn. *Scientific Reports*, **5** (1), 9573 (2015). DOI: 10.1038/srep09573
- [19] V. O. Kozlov, N. S. Kuznetsov, D. S. Smirnov, I. I. Ryzhov, G. G. Kozlov, V. S. Zapasskii. *Phys. Rev. Lett.*, **129**, 077401 (2022). DOI: 10.1103/PhysRevLett.129.077401
- [20] A. N. Kamenskii, A. Greilich, I. I. Ryzhov, G. G. Kozlov, M. Bayer, V. S. Zapasskii. *Physical Review Research*, **2** (2), 023317 (2020). DOI: 10.1103/physrevresearch.2.023317
- [21] R. Giri, S. Cronenberger, M. Vladimirova, D. Scalbert, K. V. Kavokin, M. M. Glazov, M. Nawrocki, A. Lemaitre, J. Bloch. *Phys. Rev. B*, **85**, 195313 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevB.85.195313
- [22] V. S. Zapasskii. *Optical detection of spin-system magnetization in rare-earth-activated crystals and glasses*, chap. 12 (Elsevier, 1987), p. 673–709.
- [23] A. N. Kamenskii, V. O. Kozlov, N. S. Kuznetsov, I. I. Ryzhov, G. G. Kozlov, M. Bayer, A. Greilich, V. S. Zapasskii. *Phys. Rev. B*, **105**, 014416 (2022). DOI: 10.1103/PhysRevB.105.014416
- [24] V. S. Zapasskii. *Advances in Optics and Photonics*, **5** (2), 131 (2013). DOI: 10.1364/AOP.5.000131