

**Министерство науки и высшего образования Российской Федерации
Федеральное государственное автономное образовательное
учреждение высшего образования
«КАЗАНСКИЙ (ПРИВОЛЖСКИЙ) ФЕДЕРАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ»**

ИНСТИТУТ ФИЗИКИ

КАФЕДРА КВАНТОВОЙ ЭЛЕКТРОНИКИ И РАДИОСПЕКТРОСКОПИИ
Направление: 03.03.03 – Радиопизика
Профиль: Физика магнитных явлений

ВЫПУСКНАЯ КВАЛИФИКАЦИОННАЯ РАБОТА

**Фемтосекундная оптическая и магнитооптическая
спектроскопия тонкой эпитаксиальной пленки сплава
 $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$**

Студент 4 курса группы 06-522

«__» _____ 2019 г.

_____ (Акатов А.Э.)

Научный руководитель
доцент кафедры квантовой
электроники и радиоспектроскопии,
к.ф.-м.н., доцент

«__» _____ 2019 г.

_____ (Юсупов Р.В.)

Заведующий кафедрой квантовой
электроники и радиоспектроскопии,
д.ф.-м.н., профессор

«__» _____ 2019 г.

_____ (Тагиров М.С.)

Казань-2019

СОДЕРЖАНИЕ

СОДЕРЖАНИЕ	2
Введение.....	3
1. Сверхбыстрые процессы и методы их исследования.....	6
1.1. Метод «накачка-зондирование»	6
1.2. Процессы возбуждения и релаксации в тонких плёнках	6
1.3. Магнитооптический эффект Керра	11
1.4. Основные механизмы, приводящие к магнитооптическим явлениям Керра в тонких пленках $Pd_{1-x}Fe_x$	13
2. Образцы и техника эксперимента	17
2.1 Экспериментальная установка.....	17
2.2. Образцы.....	20
3. Эксперимент и его обсуждение	24
Заключение	32
СПИСОК ЦИТИРОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ.....	33

Введение

Тонкопленочные гетероструктуры структуры типа сверхпроводник-ферромагнетик-сверхпроводник (С/Ф/С) лежат в основе устройств цифровой логики и элементов памяти, работающих при криогенных температурах [1,2]. Характеризующиеся высокой, порядка единиц терагерц, рабочей частотой и крайне низкой, порядка долей аттоватт [3,4], энергией на одно переключение, эти элементы приобретают весомое преимущество по сравнению с классическими высокотемпературными цифровыми элементами, особенно для создания нейроморфных сетей и систем искусственного интеллекта [5,6].

Важной частью С/Ф/С-структур является ферромагнитный слой, свойства которого определяют диапазон применимости основанных на них устройств. Например, для создания устройств памяти на базе структур С/Ф/С необходимы материалы, которые характеризуются малым коэрцитивным полем и наличием магнитной анизотропии в плоскости ферромагнитного слоя. Одним из рассматриваемых кандидатов являются сплавы $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ с $x < 0.10$.

Особенностью сплавов на основе палладия является механизм формирования магнитоупорядоченного (ферромагнитного) состояния. Палладий, исходя из критерия Стонера, находится на грани магнитной неустойчивости [7]. Как следствие, вокруг примесных атомов, например, железа, образуются магнитно-поляризованные области атомов палладия, названные магнитными поляронами. При понижении температуры размеры этих областей увеличиваются, а температура Кюри соответствует возникновению перколяции между магнитно-поляризованными областями, что приводит к установлению дальнего магнитного порядка. При этом, согласно исследованиям макроскопических образцов методами нейтронной дифракции [8], парамагнитные области в сплаве полностью не исчезают из-за наличия локальной неоднородности концентрации железа в палладии, однако они

проявляют тенденцию к уменьшению, стремясь к некоторой постоянной величине при дальнейшем понижении температуры.

Одной из критических характеристик С/Ф/С-структур является магнитная однородность ферромагнитного слоя, поскольку он определяет однородность значения разности фаз сверхпроводящей волновой функции, набегавшей между С-слоями в ферромагнитной прослойке, по площади сверхпроводящей структуры. Следовательно, для реализации практически значимых С/Ф/С-структур со сплавами на основе палладия в качестве Ф-слоя возникает необходимость определения условий (концентрации железа и температуры) установления в последнем однородного ферромагнитного состояния.

Однако возможности метода рассеяния нейтронов для тонких пленок толщиной порядка 10 нм ограничены вследствие малого количества материала и малости сечения рассеяния. Соответственно, для проведения таких исследований требуются иные экспериментальные подходы и методы, чувствительные к магнитной неоднородности в таких материалах.

Отметим здесь, что интегральные методы, такие, например, как магнитометрия или стационарный магнитооптический эффект Керра, дают средние по исследуемому объему величины и для исследования неоднородностей неприменимы. То же касается и метода ферромагнитного резонанса, затрагивающего лишь магнитоупорядоченную область. Возможной альтернативой являются нестационарные методы, в которых система сначала выводится из равновесия, а затем отслеживается ее релаксация. По числу и характеру эволюции релаксационных компонент можно судить о степени однородности системы. Одним из таких методов исследования неравновесной динамики в различных системах является фемтосекундная лазерная спектроскопия.

Таким образом, **целью данной работы** является исследование методами оптической и магнитооптической фемтосекундной спектроскопии эволюции релаксационных откликов на импульсное фотовозбуждение тонкой пленки

сплава $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$ в температурном диапазоне, перекрывающем парамагнитное и ферромагнитное состояния.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие **задачи**:

- 1) Освоить работу на установке для выполнения экспериментов по времяразрешенной оптической и магнитооптической спектроскопии методом «накачка-зондирование» с использованием фемтосекундных световых импульсов;
- 2) Ознакомиться с методами синтеза тонких эпитаксиальных пленок $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$;
- 3) Исследовать зависимости от времени коэффициента отражения и поворота плоскости поляризации в магнитооптическом эффекте Керра в диапазоне температур 4.2 – 300 К.
- 4) Провести анализ полученных данных и сделать заключение об эффективности использования методов времяразрешенной оптической и магнитооптической спектроскопии для изучения магнитной неоднородности в тонких пленках $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$.

1. Сверхбыстрые процессы и методы их исследования

1.1. Метод «накачка-зондирование»

Эксперименты по исследованию быстропротекающих процессов, в частности, в тонких пленках, основаны на применении фемтосекундного лазера (длительность светового импульса 10 – 100 фемтосекунд), импульс которого разделяется по амплитуде на две части. Одна из них именуется светом накачки, а другая – светом зондирования.

Импульс света накачки направляется на образец, чтобы изменить состояние твердого тела (жидкости и газы изучаются этим же методом). Зондирующий импульс должен быть сфокусирован с помощью собирающей линзы на ту же область, что и накачивающий, а его отраженный свет собран на фотодиоде. Изменение свойств образца, вызванное импульсом накачки, приводит к изменению коэффициента отражения для зондирующего импульса.

Наличие оптической линии задержки позволяет варьировать время прибытия зондирующего импульса относительно накачивающего (рисунок 1), также имеется возможность слежения за изменением оптических свойств структур во времени с очень высоким временным разрешением. Этот метод находит широкое применение в изучении разнообразных сверхбыстрых переходных явлений таких как: релаксационные процессы электронов и дырок в полупроводниках, исследование динамики теплопроводности, поворот плоскости поляризации в магнитооптическом эффекте Керра и т.д.

1.2. Процессы возбуждения и релаксации в тонких плёнках

В данном разделе приведена одна из концепций, объясняющая ряд наблюдений, полученных в экспериментах, выполненных методом «накачки-зондирования». Рассматривается процесс обмена энергией между решёточной и электронной подсистемами сразу после возбуждения на временах задержки

относительно импульса накачки – от отрицательных порядка пикосекунды до положительных порядка наносекунд.

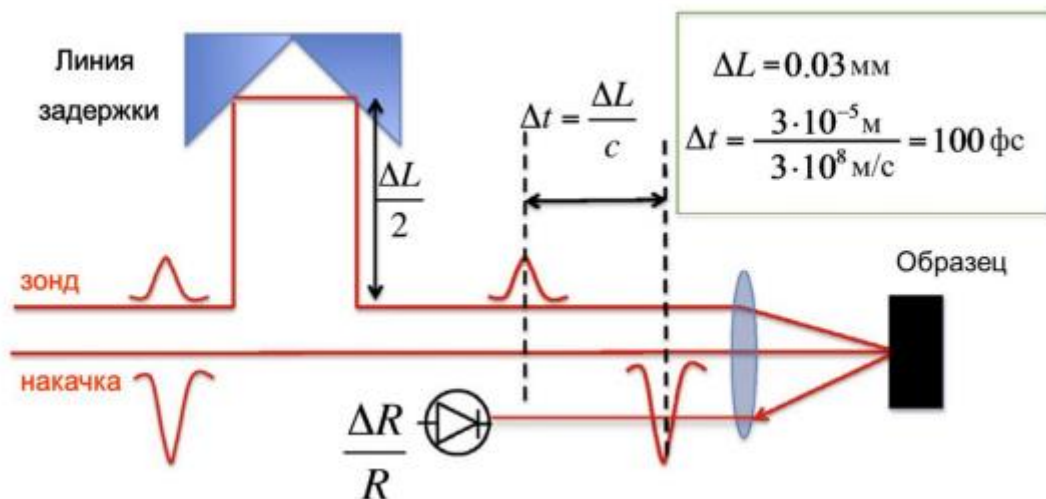


Рисунок 1 – Схема установки «накачка-зондирование» в оптической геометрии отражения. Контроль оптической линии задержки зондирующего импульса длины ΔL позволяет отслеживать время его прибытия относительно импульса возбуждения

При взаимодействии фемтосекундных импульсов лазерного излучения с веществом за время в десятки-сотни фемтосекунд у электронной подсистемы вещества появляется вероятность перехода из основного энергетического состояния с меньшей энергией в возбужденное состояние с большей энергией. Тем самым исходная система становится неравновесной. На основе экспериментальных и теоретических [9] предсказаний дальнейшая эволюция данной системы во времени может быть описана в рамках так называемой «двухтемпературной» модели [10]. На деле, речь идет о двух основных, связанных друг с другом, тепловых резервуарах в твердом теле – электронной подсистемы, напрямую возбуждаемой светом, и решеточной (фононной).

В данной модели существуют два механизма восстановления равновесного состояния: электрон-электронное взаимодействие и электрон-фононное. Динамику температуры решёточной и электронной подсистем можно описать системой дифференциальных уравнений:

$$\begin{cases} C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = k_e \nabla^2 T_e - g(T_e - T_l) + P(r, t) \\ C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = k_l \nabla^2 T_l + g(T_e - T_l) \end{cases} \quad (1.1)$$

Теплоёмкость электронов пропорциональна температуре $C_e = \gamma T_e$. Электрон. Другие параметры, теплоёмкость решётки C_l , коэффициент энергии взаимодействия электронов с решёткой g , коэффициенты теплопроводности k_e и k_l могут быть приняты постоянными.

Слагаемым $P(r, t)$ учитывается нагрев от световых импульсов. Поскольку коэффициент температурной диффузии электронов намного больше, чем у решётки намного больше ($k_e/C_e \gg k_l/C_l$), то слагаемое во втором уравнении $k_l \nabla^2 T_l$ может быть опущено.

Для достаточно тонких плёнок (с толщиной d , меньшей или равной длине поглощения света δ) в первом уравнении можно аналогично пренебречь слагаемым $k_e \nabla^2 T_e$. Тогда температура электронной и решёточной подсистем может быть принята постоянной на всей толщине плёнки.

Если нагрев происходит от единичного фемтосекундного импульса, то, исходя из всех упрощений, преобразуем уравнение (1.1) к следующему виду:

$$\begin{cases} \gamma T_e \left(\frac{\partial T_e}{\partial t} \right) = -g(T_e - T_l) \\ C_l \left(\frac{\partial T_l}{\partial t} \right) = g(T_e - T_l) \end{cases} \quad (1.2)$$

Также учтём начальные условия: $T_e(0) = T_{ex}$ и $T_l(0) = T_0$. Объединение двух уравнений (2), в одно дифференциальное уравнение для электронной температуры приводит к следующему уравнению:

$$\frac{T_e d^2 T_e}{dt^2} + \left[\frac{dT_e}{dt} \right]^2 + \frac{g}{\gamma} \left(1 + \frac{\gamma}{C_l} \right) \frac{dT_e}{dt} = 0 \quad (1.3)$$

Грубое упрощение решения уравнения (1.3) приводит к экспоненциальному затуханию:

$$T_e(t) - T_l(t) = [T_{ex} - T_0] \exp\left(-\frac{t}{\tau_{e-ph}}\right); \tau_{e-ph} = \frac{\gamma T_0}{g} \quad (1.4)$$

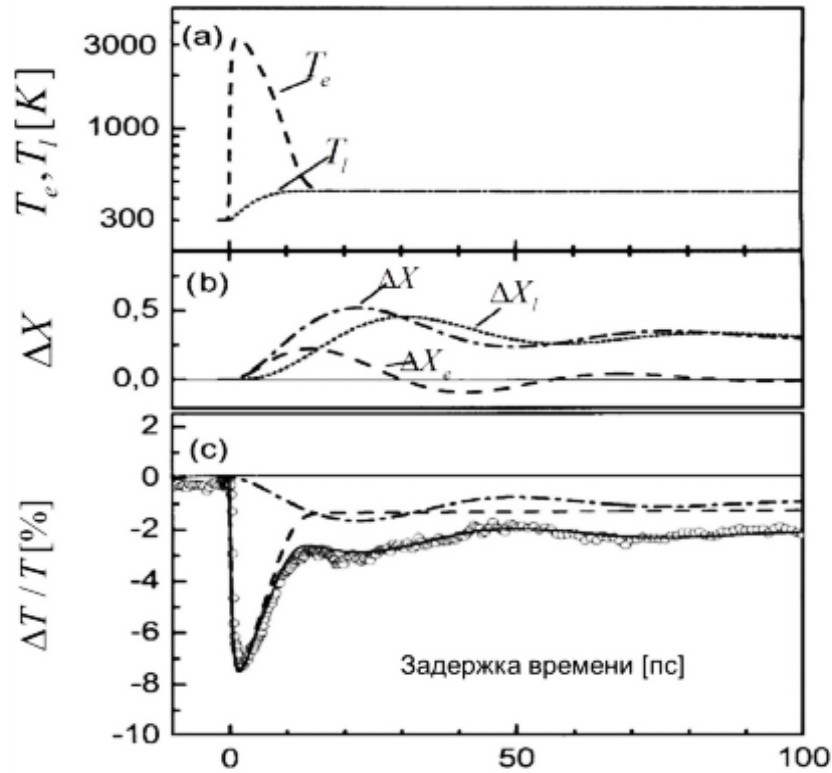


Рисунок 2 – Верхний график: зависимость электронной и решёточной подсистем от температуры, прогнозируемая в ходе описания с помощью двухтемпературной модели (ТТМ) для наночастиц металла. На нижнем графике представлено значение коэффициента пропускания (штрих-пунктирная прямая - вклад акустических волн)

Типичная временная зависимость T_e и T_l показана на рисунке 2 [11]. Коэффициент g/γ в показателе экспоненты можно вычислить через постоянную связи электрона с решёткой λ и момента второго порядка спектра фононов $\langle \omega^2 \rangle$:

$$\frac{g}{\gamma} = \left(\frac{3h}{\pi k_B} \right) \lambda \langle \omega^2 \rangle. \quad (1.5)$$

Релаксационные процессы электронов возможно измерить путем изменения коэффициента оптического отражения в диапазоне от сотен фемтосекунд до десятков пикосекунд. Основной вклад в изменение коэффициента отражения зондирующего импульса вносят как и электронная подсистема, так и решёточная:

$$\Delta R = a\Delta T_e + b\Delta T_l. \quad (1.6)$$

Релаксация оптического сигнала за промежутки времени (<10 пс) определяется по большей части только электронной подсистемой, поскольку теплоёмкость решетки во много раз превышает теплоёмкость электронов [12].

Поскольку диаметр светового пятна от лазера намного больше толщины тонкой плёнки, то передачу теплоты от таких структур при возбуждении можно рассматривать только в одном направлении. Тем не менее, с помощью решения уравнения диффузии в полубесконечной среде невозможно описать процесс теплопередачи из-за наличия резкого разрыва в функции температуры. Для объяснения данной особенности имело смысл ввести понятия теплового пограничного сопротивления и проводимости. При наличии одной тонкой плёнки на подложке уравнения теплопроводности примут вид:

$$C_f \frac{\partial T_f}{\partial t} = k_f \frac{\partial^2 T_f}{\partial z^2}, \quad (1.7)$$

$$C_s \left(\frac{\partial T_s}{\partial t} \right) = k_s \frac{\partial^2 T_s}{\partial z^2}, \quad (1.8)$$

где T_f и T_s есть температуры плёнки и подложки, соответственно; C_f и C_s их теплоёмкости, а k_f и k_s – их теплопроводности.

Начальные условия будут записаны следующим образом:

$$T_f(0, z) = \frac{F(1 - R)}{C_f \delta} \exp\left(-\frac{z}{\delta}\right) \quad (1.9)$$

F есть полная энергия импульса, R есть начальный коэффициент отражения плёнки, и δ – глубина проникновения света. В уравнении считается, что в начальный момент времени не протекают процессы поглощения света. Данное предположение оказывается справедливым, если толщина тонкой плёнки d превосходит глубину проникновения света δ и/или подложка имеет малый коэффициент поглощения лазерного пучка.

Граничные условия будут определяться исходя из предположения, что поток теплоты прямо пропорционален скачку температуры с коэффициентом σ :

$$k_f \frac{\partial T_f}{\partial z}(t, d) = \sigma(T_f - T_s); -k_s \frac{\partial T_s}{\partial z}(t, d) = \sigma(T_f - T_s) \quad (1.10)$$

Влияние, оказываемое граничной теплопроводностью, будет особенно видно, если процесс теплопередачи подложке происходит гораздо быстрее, чем остывание поверхности плёнки. Так как постоянная времени диффузии проводящей плёнки $C_f d^2/k_f$, а для поверхности подложки $C_s d/\sigma$, то в этом случае $d\zeta < k_f$.

1.3. Магнитооптический эффект Керра

В тонких плёнках, имеющих в своей внутренней структуре магнитные моменты *атомов*, которые, в свою очередь, обладают спонтанной намагниченностью (ферромагнетики), обнаруживаются свойства двойного лучепреломления света, которые приводят к появлению различных магнитооптических эффектов в пройденном и отраженном светах [13].

Важно заметить, что взаимодействие падающего света на тонкие пленки, имеющих ферромагнитные атомы, обладает целым рядом особенностей. Так, явление двойного лучепреломления ферромагнетика представляет собой не результат расщепления уровней энергии электронов внешним магнитным полем, как в слабомагнитных веществах, а возникает вследствие спонтанной намагниченности ферромагнетика [14]. Тем самым, магнитооптика структур, обладающих спонтанной намагниченностью, должна определяться внутренними эффективными полями (обменным, спин-орбитальным, спин-орбитальнообменным), которые действуют в отдельных доменах ферромагнетика. Влияние внешнего магнитного поля приводит к намагничиванию ферромагнетика – ориентации векторов намагниченности отдельных доменов в одном направлении [15].

Из этого следует, что исследование магнитооптических явлений в тонких плёнках, имеющих во внутренней структуре ферромагнетики, может служить

средством углубленного представления о природе магнетизма, исследования однородности структуры.

Магнитооптические эффекты классифицируются с учетом направления распространения света \mathbf{k} относительно ориентации намагниченности \mathbf{M} в тонкой плёнке и методики их наблюдения. Эффект Керра наблюдается в отраженном от образца свете. Волной вектор \mathbf{k} может иметь различную, нефиксированную ориентацию относительно вектора намагниченности \mathbf{M} в тонкой плёнке.

В 1876 году Джон Керр обнаружил вращение плоскости поляризации, отраженного света от намагниченного ферромагнитного образца. Взаимное расположение вектора намагниченности, плоскости «ферромагнитного зеркала» и плоскости поляризации определяют классификацию магнитооптических эффектов Керра.

Существуют полярный, меридиональный и экваториальный эффекты Керра (рисунок 3- а, б, в, соответственно) [16]. Система координат выбирается таким образом, чтобы ось Z имела направление вдоль оси намагниченности образца.

Полярный и меридиональный эффекты Керра заключаются в повороте плоскости поляризации и возникновению эллиптичности отраженного света при намагничивании тонкой плёнки. Экваториальный эффект Керра состоит в изменении интенсивности и смещению фазы р-компоненты отраженного от образца света при намагничивании [17].

Р-компонента света – это составляющая вектора электрической напряженности \mathbf{E} падающего света, параллельная плоскости падения. S-компонента отличается тем, что вектор падающей на образец электрической напряженности перпендикулярен плоскости падения.

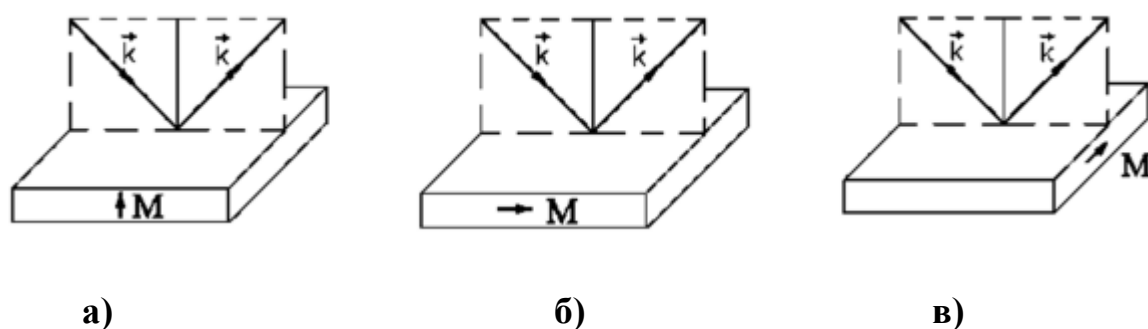


Рисунок 3 – Взаимное расположение вектора намагниченности, плоскости зеркала и плоскости падения света в образце в случае а) полярного, б) меридионального, в) экваториального эффектов Керра.

1.4. Основные механизмы, обуславливающие магнитооптические эффекты Керра в тонких пленках

При воздействии внешнего магнитного поля на носители тока тонкоплёночной структуры возникает сила Лоренца, перпендикулярная направлению движения. Это приводит к появлению поперечной составляющей тока Холла.

Эффект Холла возникает из-за асимметричного рассеяния за счет ориентированных магнитных моментов, т.е. спонтанной намагниченности в ферромагнетиках [18]. Существенен тот факт, что энергия электрона почти не меняется и характерная частота определяется частотой релаксации носителей. Также, стоит заметить, что магнитооптические эффекты Керра обусловлены движением носителей и могут найти применение для получения информации о поверхности Ферми, однородности структуры тонких плёнок, содержащих ферромагнитные атомы.

При росте частоты электромагнитных колебаний основную роль начинают играть межзонные электронные переходы – внутренний фотоэффект в металлах [19]. Вспомнив атомный эффект Зеемана, можно пояснить механизм

возникновения магнитооптических эффектов. Уровни энергий электронов в невзаимодействующих атомах или ионах будут расщепляться на подуровни Зеемана. Учет зеемановского расщепления и правил отбора приводит к тому, что переход на частоте, которая соответствует переходу с некоторого возбужденного уровня, при известной ориентации и напряженности магнитного поля в заданном направлении будет излучаться свет определенной поляризации.

И наоборот, система будет испытывать двойное лучепреломление, если на систему атомов оказать воздействие светом от постороннего источника в присутствии магнитного поля. Это происходит из-за того, что поляризуемость структуры, от которой зависят коэффициенты преломления и поглощения, оказывается неодинаковой для света с различной поляризацией. Таким образом, можно предположить, что в данном случае магнитооптические эффекты являются следствием обратного эффекта Зеемана. В некоторых простых случаях магнитооптические эффекты в ферромагнетиках можно связать с электронными переходами примерно таким же образом.

Например, рассмотрим ферромагнитные кристаллы с редкоземельными ионами, обладающих ферромагнитными свойствами. Состояния незаполненной 4f-оболочки благодаря хорошей экранировке соответствует некоторым дискретным уровням, которые, в свою очередь, можно рассмотреть как зеемановские подуровни, соответствующие различным ориентациям магнитного момента иона. Также следует иметь в виду, что положение данных подуровней должно определяться не внешним магнитным полем, а внутренним обменным полем ферромагнетика, именуемое как поле Вейсса [20].

Ситуация может усложниться в ферромагнитных металлах, однако некоторую аналогию с простейшим случаем обратного эффекта Зеемана можно усмотреть и здесь. Если рассмотреть энергетические зоны металла как локализованные уширенные энергетические уровни изолированных атомов, то в ферромагнитном металле атомным зеемановским подуровням будут соответствовать подзоны «правых» и «левых» спинов, которые оказываются смещёнными внутренним обменным полем [21].

Учитывая вклад спин-орбитального взаимодействия, интенсивность межзонных электронных переходов из занятых в вакантные состояния будет не одинакова для света с разной поляризацией, что приведёт к магнитооптическим явлениям, в частности, к эффекту Керра.

Известно, что под действием внешнего магнитного поля вектор намагниченности ферромагнетика, как и магнитный момент изолированного атома, начинает испытывать прецессию около своего положения равновесия. При этом магнитная восприимчивость ферромагнетика определяется амплитудой вынужденной прецессии при данной конкретной частоте переменного магнитного поля, достигающая максимального значения при совпадении частоты переменного поля с собственной частотой прецессии (явление ферромагнитного резонанса). Амплитуда вынужденной прецессии будет иметь зависимость от поляризации электромагнитной волны, которая приведёт, в общем случае, к двойному магнитному лучепреломлению, а на оптических частотах – к магнитооптическим эффектам.

Характерной особенностью такого механизма двойного магнитного лучепреломления является то, что здесь мы имеем дело не с влиянием намагниченности на движение электрического заряда, а непосредственно с намагничиванием ферромагнетика магнитным полем электромагнитной волны.

В диапазоне СВЧ этот механизм играет главную роль, а на оптических частотах он дает пренебрежимо малый вклад. Однако в областях прозрачности ферромагнетика в оптической области спектра, где вклад электрических дипольных переходов мал, указанный механизм может играть основную роль.

Также имеется еще один механизм магнитооптической активности магнитоупорядоченных кристаллов. Этот механизм проявляется в слабых ферромагнетиках, названными антиферромагнитные кристаллы.

В этих кристаллах магнитные моменты двух подрешеток (в самом простом случае) не полностью компенсируют друг друга вследствие того, что магнитные моменты подрешеток направлены не точно в противоположные стороны, а немного повернуты навстречу друг к другу. Угол поворота подрешеток

составляет меньше одного градуса, а значение появляющегося перпендикулярно оси антиферромагнетизма слабого магнитного момента не превышает сотых долей μ_B . К слабым ферромагнетикам относятся такие соединения как гематит ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$), ортоферрит иттрия (YFeO_3), борат железа (FeBO_3) и др.

Особенность слабых ферромагнетиков заключается в том то, что несмотря на столь малое значение магнитного момента (на 1 – 3 порядка меньше намагниченности подрешеток в ферро- и ферримагнетиках) магнитооптические эффекты в данных материалах имеют порядок схожий с величиной с магнитооптическими эффектами в классических переходных магнитных металлах, например, в чистом железе.

Взаимодействие "спин-чужая орбита" в указанных слабых ферромагнетиках возникает в результате совместного действия спин-орбитального взаимодействия в ионах железа и косвенного обменного взаимодействия между ионами железа. Это взаимодействие является парным, поскольку определяется электронными переходами в паре взаимодействующих магнитных ионов. Итог взаимодействия "спин-чужой орбиты" обусловлен антисимметричным парным обменно-релятивистским взаимодействием в магнитных ионах, поскольку при перестановке двух магнитных ионов взаимодействие "спин-чужая орбита" изменяет свой знак, а спин-орбитальное взаимодействие имеет релятивистскую природу. Следует заметить, что механизм "спин-чужая орбита" в отличие от ранее рассмотренных механизмов магнитооптической активности обусловлен взаимодействием спина одного магнитного иона с орбитальным моментом другого магнитного иона.

2. Образцы и техника эксперимента

Основным преимуществом исследования магнитооптического эффекта Керра является возможность изучения динамики изменения намагниченности и проведения эксперимента без разрушения внутренней структуры тонкой плёнки. Это позволяет, в свою очередь, проводить исследования многократно.

2.1 Экспериментальная установка

Для проведения экспериментов была использована установка на базе фемтосекундной лазерной системы, которая включает в себя задающий генератор Mica-5, регенеративный усилитель Legend Elite USP (оба устройства построены на основе Ti:Sapphire).

Данная система позволяет генерировать световые импульсы длительностью 35 фс с частотой следования импульсов 1 кГц и центральной длиной волны 800 нм. Мерой намагниченности является угол поворота плоскости поляризации света зондирования, отраженного от образца. Угол поворота определяется по разности интенсивностей двух ортогонально поляризованных компонент света зондирования после взаимодействия с образцом. Интенсивности этих двух компонент детектируются фотодиодами. Диапазон прикладываемых к образцу магнитных полей находится в пределах от -5 до +5 килоэрстед.

Была сконструирована оптическая установка по блок-схеме, изображенной на рисунке 4. Принцип работы данной установки состоит в следующем. Выходящее из генератора лазерное излучение с помощью светоделителя СД разделяется на излучение накачки и зондирования. В канале накачки установлен канал Мод, блокирующий каждый второй импульс, синхронизированный по импульсу накачки.

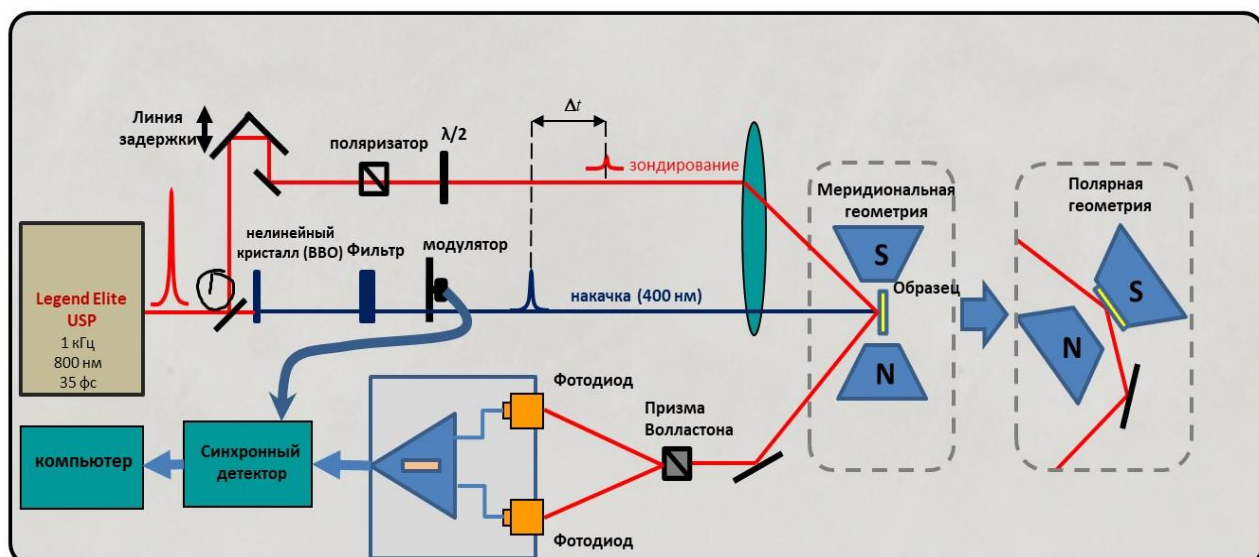


Рисунок 4.– Блок-схема экспериментальной установки для фемтосекундной спектроскопии методом “pump-probe” («накачка-зондирование») для измерения угла Керра

В тракте зондирования имеется линия задержки ЛЗ, состоящая из двух зеркал на каретке прецизионного линейного транслятора (PI-M531.2S) перпендикулярно друг другу в плоскости оптической схемы. Задержка зондирующего импульса относительно накачивающего определяется как отношение удвоенного смещения каретки транслятора относительно нулевой задержки, деленного на скорость света. Зондирующий и накачивающий пучки фокусируют с помощью собирающей линзы и сводят в одну точку образца. Отражённый зондирующий импульс, проходя через призму Волластона регистрируется фотодиодом ФД. Сигнал от фотодиода регистрируется синхронным детектором СинхрДет (Ametek 7270 DSP Lock-in Amplifier), настроенным на опорную частоту 500 Гц с выхода модулятора света. Обработка полученных результатов измерений и управление транслятором осуществляется программой, написанной в среде разработки программ LabView.

Фотография экспериментальной установки и скрин основного окна программы для автоматизации эксперимента представлены на рисунках 5 и 6, соответственно.

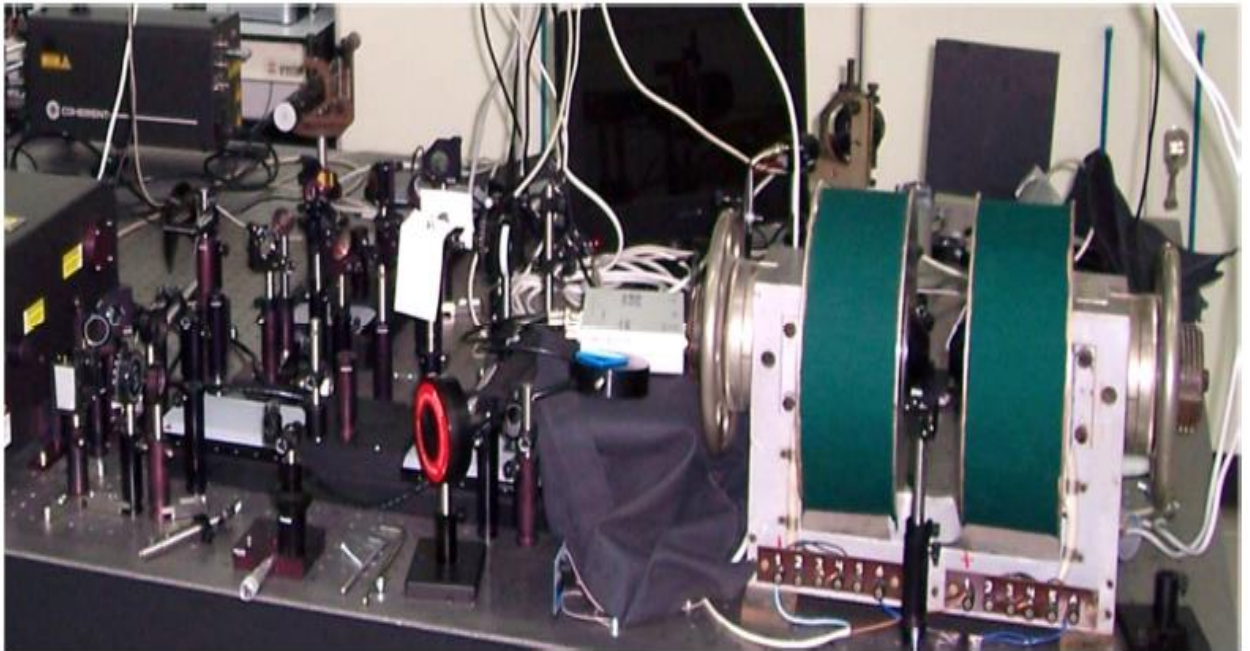


Рисунок 5 - Фото экспериментальной установки для времяразрешенных исследований магнитооптического эффекта Керра

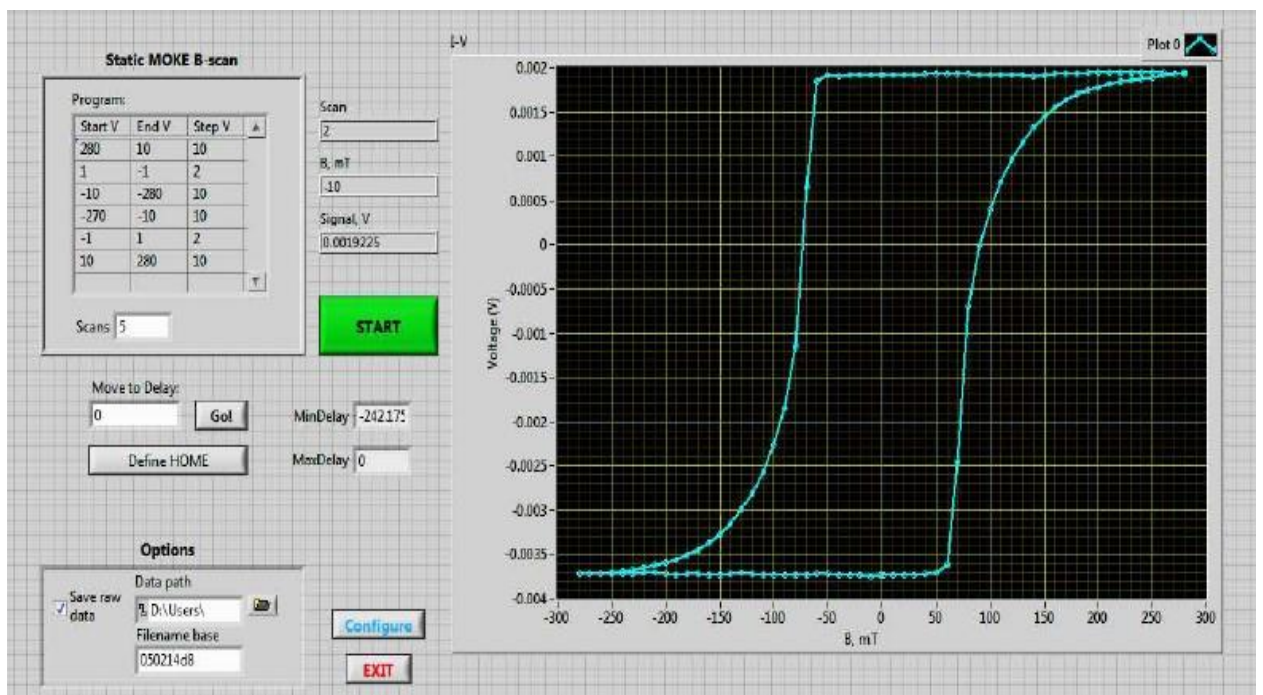


Рисунок 6 – Рабочее окно программного обеспечения во время экспериментального исследования

2.2. Образцы

Объектом данных исследований была выбрана тонкая эпитаксиальная пленка состава $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$ на подложке из монокристаллического MgO . Исходная плёнка толщиной 20 нм была выращена методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке MgO с ориентацией (001) в камере со сверхвысоким вакуумом с остаточным давлением порядка $(3-5) \times 10^{-10}$ мбар (производство компании SPECS, ФРГ).

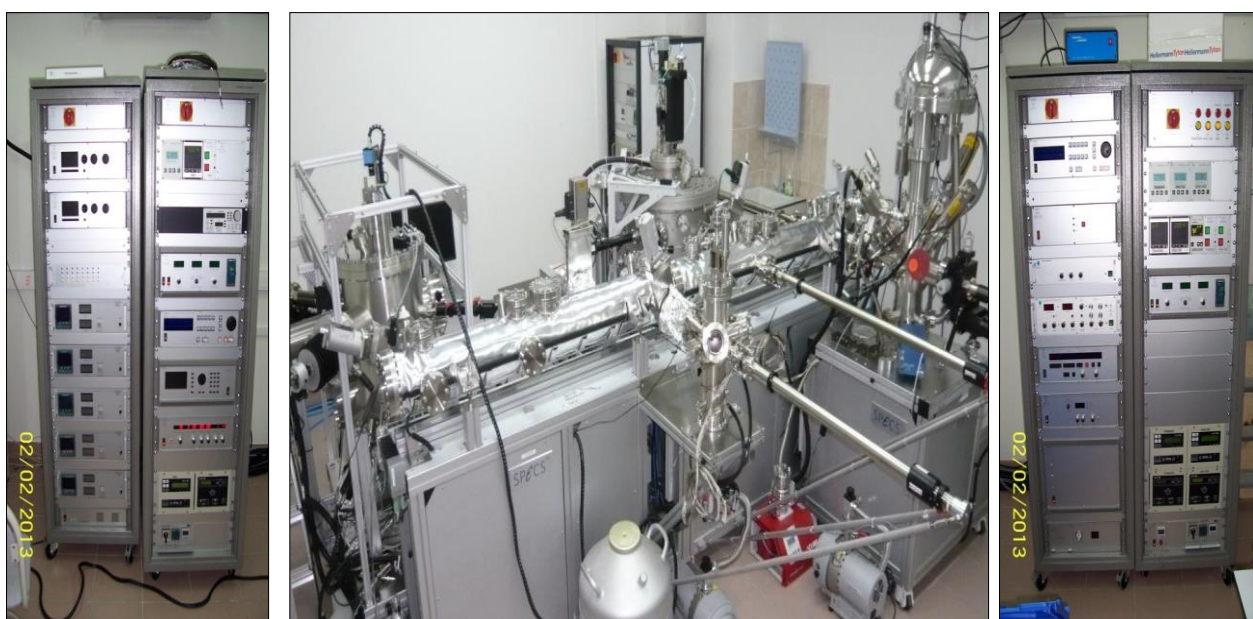


Рисунок 7 – Сверхвысоковакуумная установка для синтеза и анализа тонкоплёночных структур (SPECS, Германия)

Напыление производилось путём одновременного испарения из эффузионных ячеек, содержащих гранулы высокочистых палладия (99.95%) и железа (99.9%). Композиция плёнки задавалась температурами предварительно откалиброванных ячеек, составлявшими 1267 °C и 1158 °C, соответственно, и контролировалась с помощью спектроскопии рентгеновских фотоэлектронов.

На первом этапе на подложке при температуре 300° C была выращена пленка толщиной 7 нм. Далее температура подложки была понижена до

комнатной, и затем напылялись оставшиеся 13 нм. На последнем этапе пленка отжигалась в вакууме при температуре 600°C в течение 20 минут.

На рисунках 8 и 9 представлены рентгеновская дифрактограмма, а также картины дифракции медленных электронов на подложке (001)-MgO (левая вставка) и пленке $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$, которые были измерены в условиях сверхвысокого вакуума непосредственно до синтеза и после.

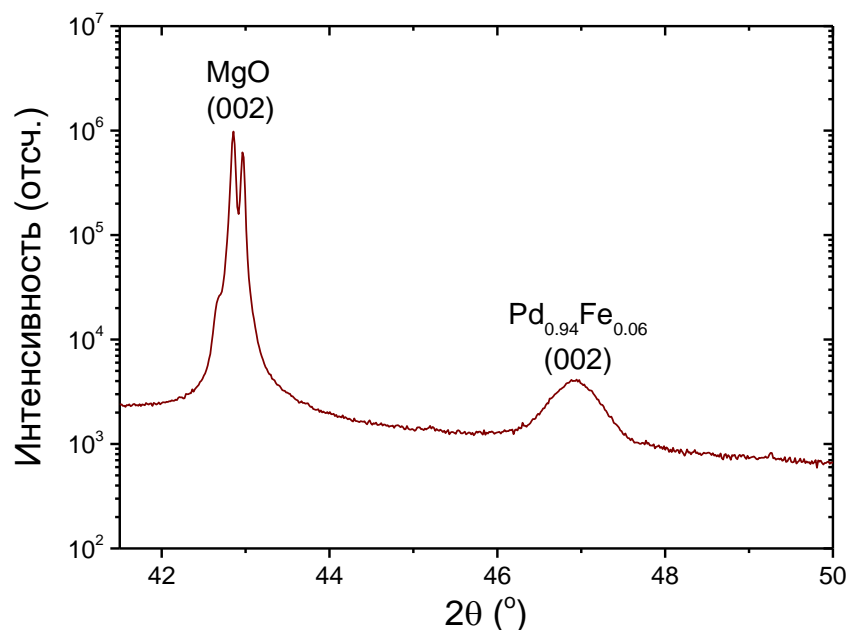


Рисунок 8 – Рентгеновская дифрактограмма образца тонкой пленки $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$ на подложке MgO (001)

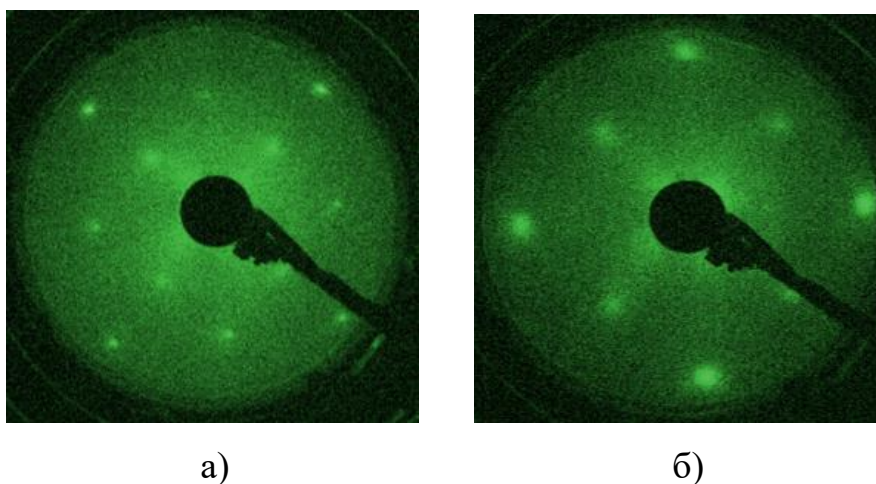


Рисунок 9 - Картина дифракции медленных электронов: а) на подложке (001)-MgO; б) пленке $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$

Представленные данные свидетельствуют о совершенстве кристаллической структуры пленки и характеры эпитаксии типа «куб на кубе». Значительная ширина рефлекса (002) для плёнки находится в полном количественном соотношении с ожидаемой из соотношения Шеррера для плёнки толщиной 20 нм [22].

Результаты исследования магнитометрии образца представлены на рисунках 10 и 11. На рисунке 10 показана петля магнитного гистерезиса пленки, откуда видно, что намагниченность насыщения при 20 К равна 210 см^{-3} , коэрцитивная сила 15 Э. Зависимость намагниченности насыщения, измеренная в поле 200 Э, намного превышающую коэрцитивную силу при низких температурах, показана на рисунке 11. Отсюда следует, что температура Кюри образца составляет $T_C = 190 \text{ К}$. Исследуемая плёнка в ферромагнитном состоянии является легкоплоскостной системой с магнитокристаллической анизотропией четвертого порядка в плоскости, где направления $\langle 110 \rangle$ и $\langle 100 \rangle$ отвечают осям легкого и тяжелого намагничивания, соответственно [23].

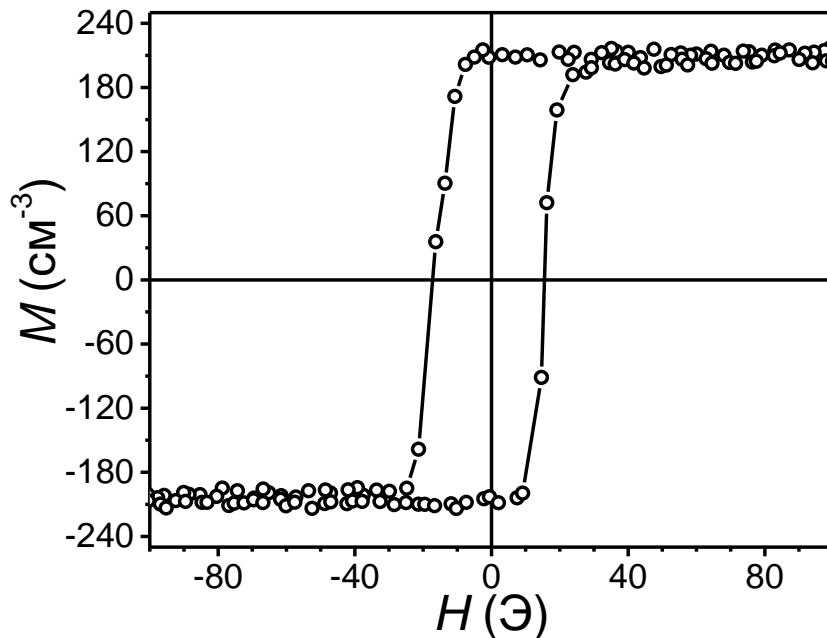


Рисунок 10 – Петля магнитного гистерезиса при температуре 20 К тонкой эпитаксиальной плёнки $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$

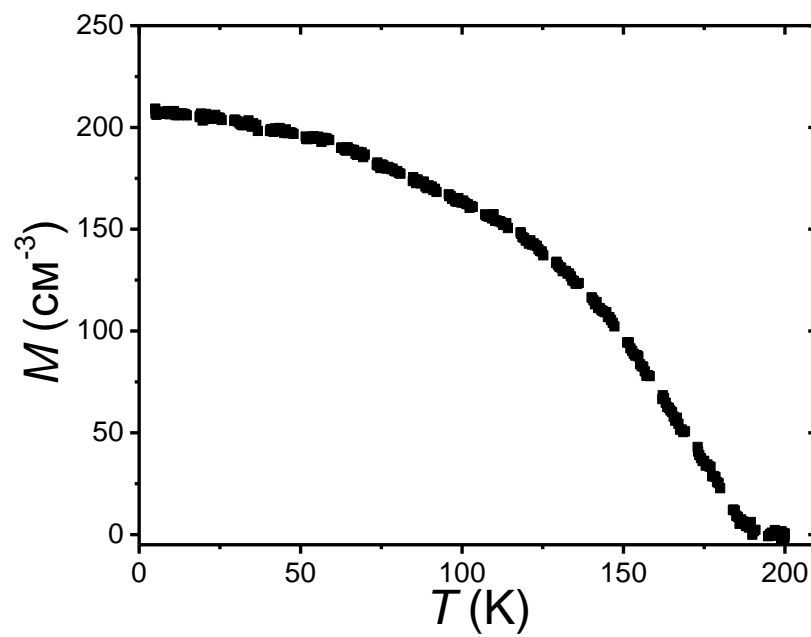


Рисунок 11 - Зависимость намагниченности насыщения плёнки $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$ от температуры;
 $H = 200 \text{ Э}$

3. Результаты эксперимента и их обсуждение

Проводя исследования тонких плёнок $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$, мы отслеживали релаксацию электронной подсистемы, которая отслеживалась по относительному изменению коэффициента отражения ($\Delta R/R$). Динамика намагниченности измерялась по отклонению угла поворота плоскости поляризации света зондирования от равновесного в меридиональном магнитооптическом эффекте Керра (МОЭК). После взаимодействия с образцом свет зондирования проходил через призму Волластона, которая разделяла пучок на две ортогонально поляризованные компоненты.

Интенсивности этих двух компонент детектировались кремниевыми фотодиодами (HamamatsuS2386-5K). Разностный сигнал с выхода фотодиодов использовался для определения отклонения угла поворота Керра от равновесной величины, суммарный - для измерения динамики коэффициента отражения.

Для проведения экспериментов в диапазоне температур 4.2 – 300 К образец был помещен в проточный гелиевый криостат ST-500 компании Janis (США). Образец крепился к холодному пальцу криостата. Туда же крепились постоянные NdFeB-магниты, создававшие магнитное поле с направлением вдоль легкой оси тонкой пленки в ее плоскости с напряженностью 470 Э при комнатной температуре. Такое значения поля гарантировало насыщение намагниченности в заданном направлении.

Для разделения вкладов в измеряемый угол поворота плоскости поляризации, связанных с намагниченностью образца и не связанных с ней, зависимость угла поворота плоскости поляризации от времени задержки измерялась для двух равных по величине и противоположных по направлению значений приложенного магнитного поля. Магнитный вклад соответствует нечетной по магнитному полю составляющей (полуразности двух откликов), а немагнитный - четной (их полусумме).

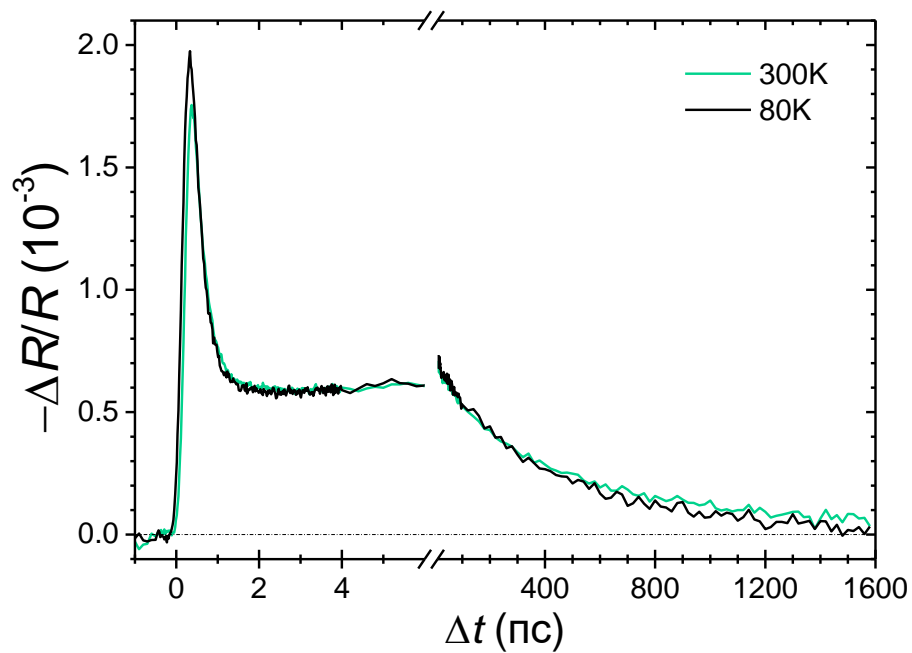


Рисунок 12 – Зависимость нормированного на равновесную величину изменения коэффициента отражения от времени после импульса возбуждения в эпитаксиальном палладии без примеси железа

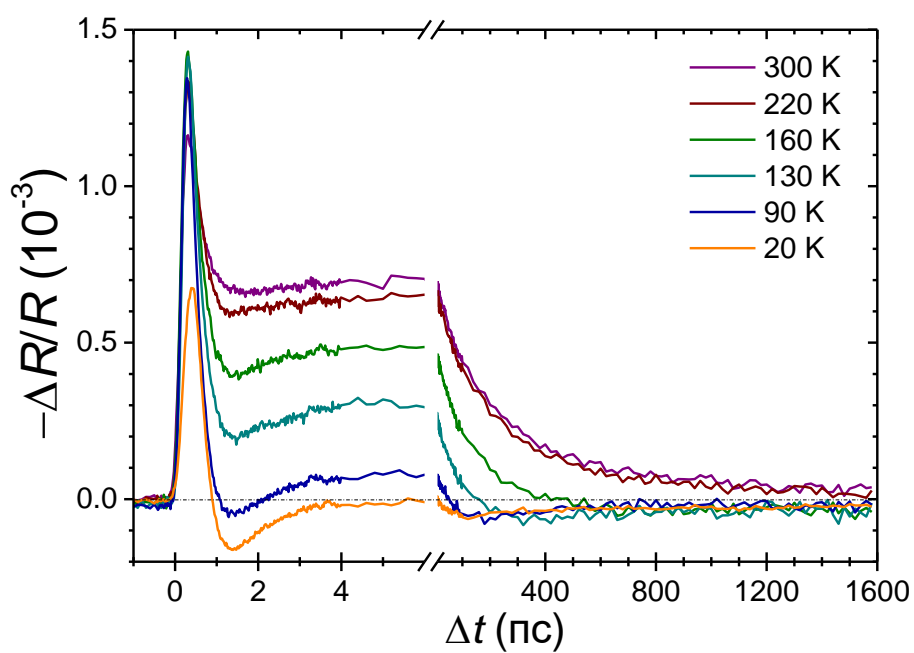


Рисунок 13 – Зависимость нормированного на равновесную величину изменения коэффициента отражения от времени после импульса возбуждения для образца $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$ в области температур 20 – 300 К

При комнатной температуре характер зависимостей пленок Pd и Pd_{0.94}Fe_{0.06} схожи: процесс релаксации в обоих случаях возможно описать суммой двух спадающих по экспоненциальному закону компонент.

Амплитуды компонент имеют один и тот же знак; при этом одна компонента - быстрая с амплитудой A_f и временем затухания 0.24 ± 0.02 пс, другая - медленная с амплитудой A_s . Время жизни медленной компоненты для пленки Pd составляет 405 ± 9 пс, для пленки состава Pd_{0.94}Fe_{0.06} - 244 ± 5 пс.

С понижением температуры каких-либо значимых изменений в зависимости коэффициента отражения пленки чистого палладия от времени задержки Δt не наблюдается.

В противоположность этому, отклики $\Delta R/R=f(\Delta t)$ образца Pd_{0.94}Fe_{0.06} при температурах ниже температуры Кюри существенно видоизменяются. Так, в кривых проявляются две дополнительные отрицательные компоненты: выраженная компонента с характерным временем затухания ~ 0.8 пс и амплитудой B_f и слабо выраженная с временем затухания ~ 1 нс и амплитудой B_s . Кроме того, уменьшается амплитуда и становится короче время релаксации положительной долгоживущей компоненты. В диапазоне температур 5 – 300 К релаксация коэффициента отражения может быть описана выражением:

$$-\frac{\Delta R}{R(\Delta t)} = A_f e^{-\frac{\Delta t}{\tau_f^A}} + A_s e^{-\frac{\Delta t}{\tau_s^A}} - B_f e^{-\frac{\Delta t}{\tau_f^B}} - B_s e^{-\frac{\Delta t}{\tau_s^B}} \quad (3.1)$$

На рисунке 14 представлена эволюция временной зависимости угла поворота Керра с температурой для пленки Pd_{0.94}Fe_{0.06}. Сигнал значимой амплитуды наблюдается только при $T < T_C$. Структура откликов начинает качественно различаться для диапазонов температур $70 \text{ К} \leq T < T_C$ и $T < 70 \text{ К}$, и в общем случае описывается выражением:

$$\Delta\theta_K(\Delta t) = \left\{ A_{r1}^K \left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_{r1}^K}} \right) + A_{r2}^K \left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_{r2}^K}} \right) \right\} \cdot e^{-\frac{\Delta t}{\tau_d^K}} \quad (3.2)$$

где компоненты с амплитудами A_{r1}^K и A_{r2}^K описывают нарастание, а последний экспоненциальный множитель – спад сигнала

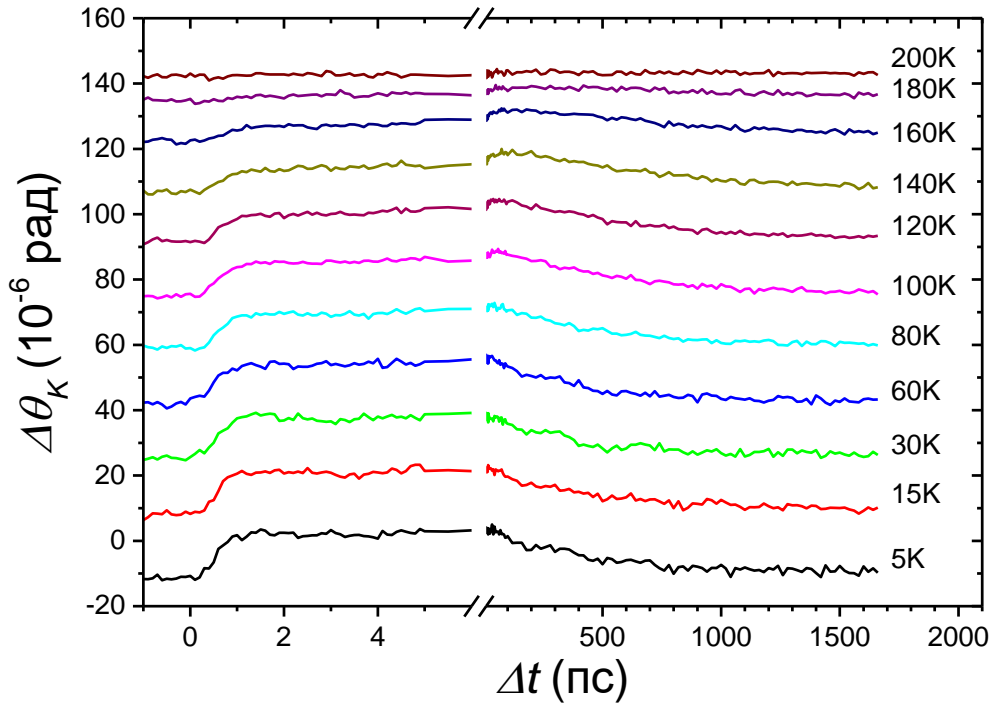


Рисунок 14 – Эволюция временной зависимости угла поворота плоскости поляризации Керра с температурой для эпитаксиальной плёнки $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$

Температурные зависимости абсолютных значений отдельных амплитуд получены методом аппроксимации набора экспериментальных данных выражениями (3.1) и (3.2), представлены на рисунке 15. Здесь нужно отметить постоянство амплитуды A_s и времени релаксации τ_s^A при $T \geq T_C$, излом в их зависимостях при $T = T_C$, спад A_s почти до нуля и укорочение в несколько раз τ_s^A при понижении температуры.

Амплитуда A_f и время релаксации τ_f^A быстрой компоненты не проявляют какой-либо значимой зависимости от температуры и потому не представлены на рисунке 15. Амплитуда быстрой компоненты противоположного по отношению к A_f и A_s знака, B_f , имеет ненулевое значение во всем диапазоне температур 5 – 300 К, и плавно нарастает с понижением температуры. Ее время релаксации

ниже T_C практически не зависит от температуры и составляет $\tau_f^B = 0.80 \pm 0.10$ пс, а при $T > T_C$ плавно возрастает к 300 К до ~ 1.2 пс.

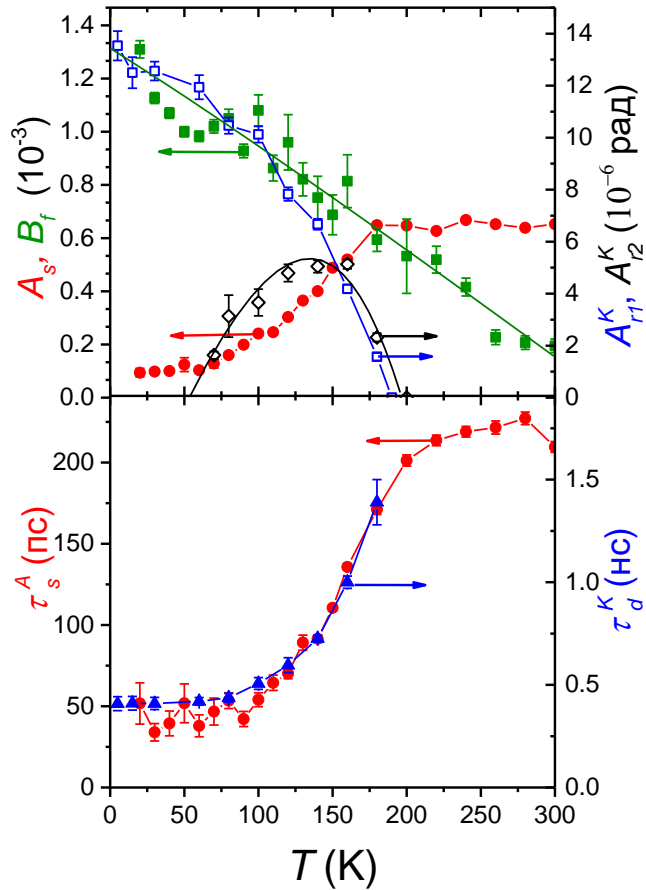


Рисунок 15 – Температурные зависимости амплитуд (верхняя панель) и характеристических времен (нижняя панель) компонент откликов согласно выражениям (3.1) и (3.2). Линии на рисунке являются ориентирами для глаз

Наконец, о медленной компоненте с амплитудой B_s по имеющимся данным можно сказать, что явно она наблюдается в откликах при $T < 150$ К, а ее время релаксации - τ_s^B порядка 1 нс.

Характерное время нарастания для первой компоненты $\tau_{r1}^K \sim 0.3$ пс слабо зависит от температуры, но увеличивается до ~ 0.8 пс при приближении к T_C . Амплитуда этой компоненты A_{r1}^K плавно нарастает при понижении температуры (рисунок 15). Вторая нарастающая компонента проявляется в ограниченном

диапазоне температур $70 \text{ K} \leq T < T_c$. Её характерное время τ_{r2}^K лежит в пределах $10 - 25 \text{ пс}$, а температурная зависимость амплитуды A_{r2}^K показана на рисунке 15.

Следующий по времени этап – восстановление равновесного угла Керра, которое также носит экспоненциальный характер и происходит на масштабе $\tau_d^K \sim 0.5 \div 1.5 \text{ нс}$, проявляя выраженное замедление при приближении к T_c (рисунок 15). Зависимость ее амплитуды A_d^K от температуры представляет собой сумму зависимостей амплитуд A_{r1}^K и A_{r2}^K .

Переходя к обсуждению полученных результатов, отметим явную корреляцию температурных зависимостей магнитного и электронного откликов исследуемой пленки с установлением в ней ферромагнитного упорядочения.

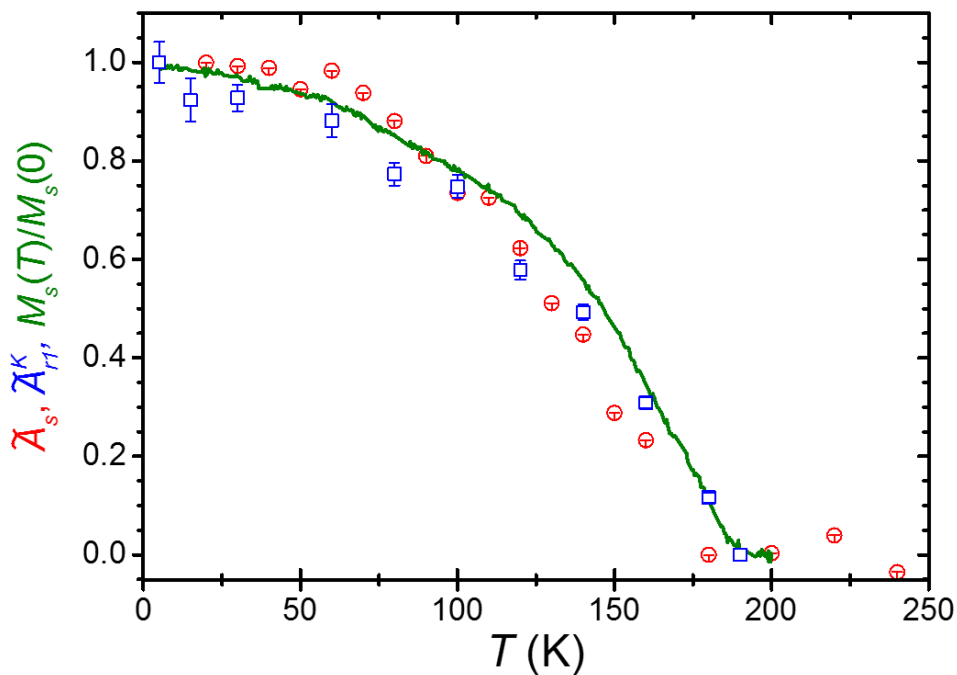


Рисунок 16 – Температурные зависимости представленных на рисунке 15 амплитуд компонент фотоиндуцированных изменений коэффициента отражения (круги) и угла поворота Керра (квадраты), преобразованные и нормированные по величине для их сравнения с ходом намагниченности насыщения (сплошная линия).

Для иллюстрации данного утверждения на рисунке 16 представлены температурные зависимости амплитуд быстрой нарастающей компоненты в угле

поворота Керра \widetilde{A}_{r1}^K и медленной компоненты релаксации коэффициента отражения \widetilde{A}_s с температурным ходом нормированной намагниченности насыщения $M_{s(T)}/M_s(0)$.

Не вызывает сомнения и корреляция с магнитным упорядочением времен релаксации коэффициента отражения τ_s^A и угла Керра θ_d^K : оба увеличиваются с повышением температуры, хотя и отличаются на порядок по величине.

Отметим также, что максимальная скорость изменения перечисленных в данном абзаце величин наблюдается при температурах, близких к T_C , но ниже неё.

Богатый набор проявляющихся во описанных экспериментах релаксационных компонент и масштабов времен, на наш взгляд, может быть объяснен, лишь с учётом локальной неоднородности состава и связанных с ней магнитной и электронной неоднородности сплава $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ с малой концентрацией железа x ($x < 0.10$).

Так, температурная зависимость амплитуды V_f не следует зависимости намагниченности насыщения. Данная компонента может быть связана с объемом магнитно-поляризованных областей вокруг атомов железа. Такие области имеются и при $T > T_C$, поэтому данная компонента проявляется и в парамагнитной фазе, а нарастание ее с понижением температуры в этом случае отражает увеличение радиуса магнитных полюсов и, соответственно, объема магнитно-поляризованной составляющей пленки, независимо от установления дальнего магнитного порядка.

Медленная компонента релаксации коэффициента отражения наблюдается в пленках как чистого палладия, так и $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$. Амплитуда этой компоненты A_s для пленки чистого палладия от температуры не зависит (рисунок 12). Для тонкой эпитаксиальной пленки $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$, поскольку A_s уменьшается с ростом намагниченности насыщения, можно предположить, что она пропорциональна объему парамагнитной фазы в образце. В рамках этого предположения, конечное малое значение A_s при близкой к нулю температуре, составляющее примерно

10% от исходного, отражает наличие в образце соответствующей мелкомасштабной доли объема в парамагнитном состоянии, слабо связанной с доминирующим ферромагнитным кластером.

С неоднородностью пленки $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$, на наш взгляд, следует связывать и проявление второй нарастающей компоненты во временных зависимостях угла поворота Керра в области температур $70 \text{ K} \leq T < T_C$, когда степень неоднородности должна проявиться наиболее сильно. Однако, отметим, что подтверждение взаимосвязи сложной структуры магнитного и электронного откликов пленки сплава $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$ с естественно присущей ей неоднородностью возможно при систематическом изучении концентрационной серии образцов $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ с $x < 0.10$

Заключение

Таким образом, в результате выполненной работы получены следующие основные результаты:

1. Проведены исследования тонкой эпитаксиальной пленки сплава $\text{Pd}_{0.94}\text{Fe}_{0.06}$ с $T_C = 190$ К на подложке MgO методами фемтосекундной оптической и магнитооптической спектроскопии. Обнаружены многокомпонентные отклики в динамике намагниченности и коэффициента отражения и определены характерные времена фотоиндуцированного размагничивания и восстановления намагниченности.
2. Несмотря на ожидаемую однородность ферромагнетизма для пленки палладия с 6 ат.% железа, наблюдались проявления магнитной неоднородности в диапазоне температур $80 \text{ К} < T < T_C$. При температурах $T < 50$ К ферромагнетизм становится практически однородным, тем не менее, в системе сохраняется до 10% объема парамагнитных вкраплений палладия, обедненных железом и слабо связанных с бесконечным ферромагнитным кластером.
3. Полученные результаты показывают, что примененная методика времяразрешенного лазерного зондирования в фемто- и пикосекундном диапазонах является эффективным инструментом для исследований магнитной неоднородности тонких пленок сплавов $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ с малой концентрацией железа, перспективных для криоспинтронных приложений.

СПИСОК ЦИТИРОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Рязанов В.В. Джозефсоновский контакт сверхпроводник- ферромагнетик-сверхпроводник как элемент квантового бита (эксперимент) // УФН. — 1999. — Т.169. — С.920-922.
2. Ryazanov V.V Coupling of two superconductors through a ferromagnet: evidence for a π -junction // Phys. Rev. Lett. — 2001. — V.86. — P.2427-2430.
3. Madden A. E. Phase controllable Josephson junctions for cryogenic memory // Supercond. Sci. Technol. — 2019. — V.32. — Art. 015001 (6 p.).
4. Volkmann M.H. Implementation of energy efficient single flux quantum digital circuits with sub-aJ/bit operation // Supercond. Sci. Technol. — 2013. — V.26. — 015002 (16 p.).
5. Schneider M.L. Ultralow power artificial synapses using nanotextured magnetic Josephson π -junctions / M.L. Schneider, C.A. Donnelly, S.E. Russek, B. Baek, M.R. Pufall, P.F. Hopkins, P.D. Dresselhaus, S.P. Benz, W.H. Rippard // Science Adv. — 2018. — V. 4. — Art.e1701329 (8 p.).
6. Soloviev I.I. Adiabatic superconducting artificial neural network: basic cells / I.I. Soloviev, A.E. Schegolev, N.V. Klenov, S.V. Bakurskiy, M.Yu. Kupriyanov, M.V. Tereshonok, A.V. Shadrin, V.S. Stolyarov, A.A. Golubov // J. Appl. Phys. — 2018. — V.124. — Art. 152113 (8 p.)
7. Mohn P. Magnetism in the Solid State // Springer Series in Solid-State Sciences. — 2006. — V.134. — N.229. — 226 p.
8. Low G.G Distribution of the ferromagnetic polarization induced by iron and cobalt atoms in palladium / G.G Low, T.M. Holden // Proc. Phys. Soc. — 1966. — V.89. — P.119-127.
9. Smith A. N. Nonequilibrium heating in metal films: an analytical and numerical analysis / A. N. Smith, J.L. Hostetler, P.M. Norris // Numerical Heat Transfer, Part A. — 1999. — V. 35. — N. 8. — P.859–873.
10. Perner M. Observation of hot-electron pressure in the vibration dynamics of metal nanoparticles / M. Perner, S. Gresillon, J. Mrz, G. von Plessen, J.Feldmann,

- J. Porstendorfer, K.-J. Berg, G. Berg // *Phys. Rev. Lett.* — 2000. — V. 85. — N4. — P. 792-795.
11. Brorson S.D. Femtosecond Room-Temperature Measurements of the Electron-Phonon Coupling Constant λ in Metallic Superconductors / S. D. Brorson, A. Kazeroonian, J. S. Moodera, D. W. Face, T. K. Cheng, E. P. Ippen, M.S. Dresselhaus, G. Dresselhaus // *Phys. Rev. Lett.* — 1990. — V. 64. — P. 2172-2175.
12. Stoner R.J. Conductance and heat flow between solids at temperatures from 50 to 300K / R.J. Stoner, H.J. Maris Kapitza // *Phys. Rev. B.* — 1993. — V. 48, N. 22. — P. 16373-16387.
13. Шалыгина Е.Е. Линейные магнитооптические эффекты в ферромагнетиках в отраженном свете: спецпрактикум кафедры магнетизма / Е.Е. Шалыгина, В.Е. Зубов, Т.Б. Шапаева // М.: МГУ им. М.В. Ломоносова — 2014. — С.19.
14. Кринчик Г.С. Физика магнитных явлений // М.: Изд-во МГУ — 1985. — С.336.
15. Смоленский Г.А. Физика магнитных диэлектриков // Л.: Наука. — 1974. — 454 с.
16. Звездин А.К. Магнитооптика тонких плёнок / А.К. Звездин, В.А. Котов // М.: Наука. — 1988. — 192 с.
17. Аззам Р. Эллипсометрия и поляризованный свет/ Р. Аззам, Н. Башара // М.: "Мир". — 1991. — 584 с.
18. Ландсберг Г.С. Оптика // М.: Наука. — 1976. — 971 с.
19. Jacquet J.C. Magnetic ultrathin films, multilayers and surface / J.C. Jacquet, T. Valet // *MRS Symp. Proc.* — 1995. — V.384. — P.477-483.
20. Быков И.Б. Физика твердого тела / И.Б. Быков, Е. А. Ганьшина, А.Б. Грановский, В. С. Гущин // М.: "Мир". — 2000. — Т.3. — 487 с.
21. Лобов И.Д. Физика твердого тела / И.Д. Лобов, М.М. Кириллова, Л.Н. Ромашев и др. // М.: Наука. — 2009. — 2337 с.
22. Esmaili A. Epitaxial growth of thin Pd_{1-x}Fe_x films on MgO single crystal, thin solid films/ A. Esmaili A et al. — 2019. — V. 669. — P.338-344.

23. Esmaeili A. Magnetic properties of thin epitaxial Pd_{1-x}Fe_x alloy films deposited by molecular beam epitaxy technique / A. Esmaeili et al. // J. Alloys Comp. — 2019 (в печати).