



**MATEMATICKO-FYZIKÁLNÍ
FAKULTA**
Univerzita Karlova

BAKALÁŘSKÁ PRÁCE

Markéta Nerodilová

**Ultrarychlá laserová spektroskopie
nekolineárních antiferomagnetů**

Katedra chemické fyziky a optiky

Vedoucí bakalářské práce: prof. RNDr. Petr Němec, Ph.D.

Studijní program: Fyzika

Studijní obor: FP

Praha 2024

Prohlašuji, že jsem tuto bakalářskou práci vypracoval(a) samostatně a výhradně s použitím citovaných pramenů, literatury a dalších odborných zdrojů. Tato práce nebyla využita k získání jiného nebo stejného titulu.

Beru na vědomí, že se na moji práci vztahují práva a povinnosti vyplývající ze zákona č. 121/2000 Sb., autorského zákona v platném znění, zejména skutečnost, že Univerzita Karlova má právo na uzavření licenční smlouvy o užití této práce jako školního díla podle §60 odst. 1 autorského zákona.

V dne

Podpis autora

Děkuji vedoucímu bakalářské práce prof. RNDr. Petru Němcovi, Ph.D. za poskytnuté konzultace, trpělivý přístup a všechny čas věnovaný při vypracovávání této práce, včetně pomoci s interpretací naměřených výsledků. Dále bych ráda poděkovala Mgr. Jozefu Kimákovi za pomoc při měření, za vysvětlení fungování sestavené aparatury a zapůjčení skriptu zefektivňujícího zpracování naměřených dat. Také bych chtěla poděkovat prof. RNDr. Ivanu Němcovi, Ph.D. za možnost využití spektrofotometru na PřF UK a Bc. Julii Střihavkové za zaškolení pro jeho používání. V neposlední řadě děkuji také rodině a přátelům za podporu v průběhu psaní bakalářské práce.

Název práce: Ultrarychlá laserová spektroskopie nekolineárních antiferomagnetů

Autor: Markéta Nerodilová

Katedra: Katedra chemické fyziky a optiky

Vedoucí bakalářské práce: prof. RNDr. Petr Němec, Ph.D., Katedra chemické fyziky a optiky

Konzultant: Mgr. Jozef Kimák, Katedra chemické fyziky a optiky

Abstrakt: Tato práce se zabývá studiem tenké vrstvy nekolineárního antiferomagnetického kovu Mn_3GaN na substrátu MgO pomocí magneto-optické metody excitace a sondování. Zjistili jsme, že po dopadu femtosekundového laserového pulsu Mn_3GaN vykazuje velmi podobné chování jako obdobný nekolineární antiferomagnet Mn_3NiN . Konkrétně jsme zde pozorovali magneto-optický signál, jehož velikost závisí silně na orientaci lineární polarizace excitačních pulzů. Tento jev interpretujeme jako důsledek působení ultrakrátkých krutů na jednotlivé spiny vlivem anizotropní absorpce excitačního laserového pulsu jednotlivými mangany, které deformují příslušnou spinovou strukturu. Existence tohoto jevu v Mn_3NiN a Mn_3GaN , které mají odlišné spinové konfigurace, tedy ukazuje na jeho univerzálnější charakter. Ve studovaném Mn_3GaN je tento efekt patrný i při pokojové teplotě, což je spolu s velice rychlou (pikosekundovou) dynamikou návratu do rovnovážné spinové konfigurace velice zajímavé z hlediska potenciálního vývoje ultrarychlých magnetických pamětí.

Klíčová slova: antiferomagnetická spintronika, nekolineární antiferomagnety, ultrarychlá laserová spektroskopie, magneto-optika, Voigtův jev

Title: Ultrafast laser spectroscopy of noncollinear antiferromagnets

Author: Markéta Nerodilová

Department: Department of Chemical Physics and Optics

Supervisor: prof. RNDr. Petr Němec, Ph.D., Department of Chemical Physics and Optics

Consultant: Mgr. Jozef Kimák, Department of Chemical Physics and Optics

Abstract: This thesis is devoted to a study of a thin layer of noncollinear antiferromagnetic metal Mn_3GaN on a MgO substrate using magneto-optical pump and probe technique. We found that after the impact of a femtosecond laser pulse, Mn_3GaN exhibits very similar behavior to the analogous noncollinear antiferromagnet Mn_3NiN . Specifically, we observed a magneto-optical signal whose magnitude depends strongly on the orientation of the linear polarization of the excitation pulses. We interpret this phenomenon as a consequence of the action of ultrashort torques on individual spins due to anisotropic absorption of the excitation laser pulse by individual manganese, which deforms the corresponding spin structure. Thus, the existence of this phenomenon in Mn_3NiN and Mn_3GaN , which have different spin configurations, points to its universal character. In the studied Mn_3GaN , this effect is evident even at room temperature, which, together with the very fast (picosecond) dynamics of the return to the equilibrium spin configuration, is very interesting in terms of the potential development of ultrafast magnetic memories.

Keywords: antiferromagnetic spintronics, noncollinear antiferromagnets, ultrafast laser spectroscopy, magneto-optics, Voigt effect

Obsah

Úvod	2
1 Teoretická část	3
1.1 Spintronika	3
1.2 Nekolineární antiferomagnety	8
2 Experimentální uspořádání	9
3 Studované vzorky	12
4 Výsledky měření	14
4.1 Kolmý dopad sondovacího svazku na vzorek	14
4.2 Nekolmý dopad sondovacího svazku na vzorek	22
5 Diskuse výsledků	24
Závěr	26
Seznam použité literatury	27
Seznam obrázků	29

Úvod

Během posledních 60 let docházelo k postupnému zmenšování, zlevňování a zvyšování výkonu polovodičových čipů, což umožnilo zaintegrovat výpočetní technologii do všech oblastí našeho života. Roku 1965 Gordon Moore, spoluzakladatel společnosti Intel, předpověděl, že zdokonalení výrobních technik umožní zdvojnásobit výpočetní výkon počítačů přibližně každé dva roky. Tato predikce, známá jako Moorův zákon, spočívá v exponenciálním růstu počtu tranzistorů na integrovaném obvodu. Schopnost neustálého zmenšování tranzistorů a jejich hustší integrace na křemíkové čipy však v důsledku projevu kvantových jevů již v současné době naráží na své fyzikální hranice.

Slibnou alternativou k elektronice, a s ní spojenými čipy založenými na technologii CMOS, je spintronika. Na rozdíl od klasické elektroniky, která spočívá na manipulaci s nábojem elektronů, je spintronika založena také na manipulaci s jejich spinem. Spintronická zařízení mají potenciál dosažení vyšší výpočetní rychlosti a větší úložné kapacity při nižší spotřebě energie v porovnání s tradičními čipy CMOS.

Mezi aktuálně komerčně dostupné spintronické součástky patří čtecí hlavy v pevných discích a na trh dostávající se nevolatilní paměti typu MRAM. Aktivní část obou součástek je tvořena feromagneticky uspořádanými materiály. V nedávné době se však objevil koncept antiferomagnetické spintroniky, kde je aktivní část zařízení tvořena antiferomagnetem. V porovnání s feromagnetem jsou antiferomagnetem necitlivé na vnější magnetické pole a u součástek na jejich bázi lze principiálně docílit vyšší výpočetní rychlosti a takové miniaturizace, která by u feromagnetů byla nedosažitelná.

S necitlivostí antiferomagnetů na vnější magnetické pole se však pojí také jejich obtížné studium pomocí běžných magnetických charakterizačních metod. Jednou z mála dostupných metod pro studium antiferomagnetů je optická spektroskopie.

Velmi zajímavou a potenciálně perspektivní třídou antiferomagnetů jsou nekolineární antiferomagnetem. Jedná se o antiferomagnetem, u nichž dochází k výhodné kombinaci vlastností antiferomagnetů a vlastností, které byly dříve přisuzovány pouze feromagnetům.

Náplní bakalářské práce bylo studium tenké vrstvy nekolineárního antiferomagnetického kovu Mn_3GaN metodou excitace a sondování. Jedná se o optickou metodu, jednu z technik ultrarychlé laserové spektroskopie, která umožňuje provádět časově rozlišené experimenty. Tato práce byla motivována experimenty realizovanými v nedávné době v Laboratoři OptoSpintroniky, kde bylo pozorováno, že po dopadu femtosekundového laserového pulzu na tenký film z nekolineárního antiferomagnetického kovu Mn_3NiN dojde k ultrarychlé (pikosekundové) změně jeho magnetického uspořádání [1]. Hlavním cílem této bakalářské práce bylo zjistit, jestli k podobnému chování dochází také v Mn_3GaN . Tento materiál má také nekolineární uspořádání spinů, ale oproti Mn_3NiN se liší směry jednotlivých spinů (podrobněji viz kap. 5: Diskuse výsledků).

1. Teoretická část

1.1 Spintronika

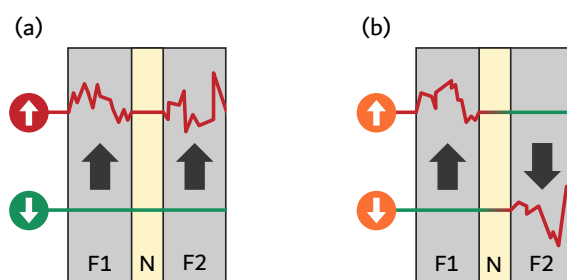
Spintronika je obor elektroniky, který navíc od klasické elektroniky využívá k zápisu, čtení a přenosu informací kromě náboje elektronů také jejich spin – vnitřní moment hybnosti neorbitálního původu. Spin je kvantovou vlastností všech elementárních částic a přes gyromagnetický poměr je přímo spojen s vnitřním magnetickým momentem. Ačkoliv je spin vektorovou veličinou, tak dle základních principů kvantové mechaniky může nabývat pouze diskrétních hodnot orientací v prostoru. Jedna z komponent spinu, konvenčně označovaná jako z -ová, je kvantována přes redukovanou Planckovu konstantu \hbar vztahem $m_s\hbar$, kde m_s je magnetické spinové kvantové číslo, které v případě elektronu nabývá hodnot $\pm\frac{1}{2}$. Tyto dva možné stavy elektronu bývají většinou označovány jako „spin-up“ a „spin-down“. Z pohledu spintroniky probíhá vedení elektrického proudu ve dvou spinových kanálech, „spin-up“ a „spin-down“, které se v magneticky uspořádaných materiálech vyznačují vzájemně značně odlišnou vodivostí.

Původ odlišné elektrické vodivosti spinových kanálů je vysvětlen např. v [2], a to na základě následujícího principu. Uvažujme feromagnet (např. Fe, Ni, Co a jejich slitiny), v nichž jsou ve Fermiho hladině zastoupeny elektrony z pásů $4s$ i $3d$. Působením silné výměnné interakce upřednostňující paralelní orientaci spinů jsou „spin-up“ a „spin-down“ $3d$ pásy energeticky posunuty, což vytváří nerovnováhu mezi počtem $3d$ „spin-up“ a „spin-down“ elektronů, a tedy vede ke vzniku feromagnetického momentu. Naopak vedení elektrického proudu je převážně zajištěno $4s$ elektrony s mnohem větší pohyblivostí, jejichž energetický pás není rozštěpen. Během vedení však dochází k rozptylu s elektronů, který je primárně způsoben s - d elektronovými přechody. Protože je hustota stavů $3d$ elektronů na Fermiho hladině spinově nerovnoměrná, je pravděpodobnost tohoto rozptylu (popsaná Fermiho zlatým pravidlem) spinově závislá, což se projevuje v rozdílných středních volných drahách elektronů s opačným spinem. A proto v limitě zanedbání událostí, kdy mezi „přetočením“ spinu během rozptylu elektron podstoupí několik spin-zachovávajících rozptylových událostí, je vodivost dvou spinových kanálů odlišná.

Odlišná vodivost spinových kanálů dává vzniku mnoha spintronickým jevům. Jedním z nich je gigantická magnetorezistence (*giant magnetoresistance* - GMR; obr. 1.1), na jejímž principu dnes fungují čtecí hlavy v pevných discích (*hard disk drive* - HDD). K jevu dochází v uspořádání dvou feromagnetických vrstev, které jsou spojeny nemagnetickým vodičem. Při paralelní magnetizaci feromagnetických vrstev (obr. 1.1a) se elektrony se spinem antiparalelním k magnetizaci vrstev šíří skrz element skoro nerozptýleny. Při antiparalelním uspořádání feromagnetických vrstev (obr. 1.1b) jsou „spin-up“ i „spin-down“ elektrony v jedné z vrstev značně rozptylovány, což se na makroskopické úrovni projevuje vyšším elektrickým odporem. Elektrický odpor elementu je tak silně závislý na vzájemné orientaci magnetizace feromagnetických vrstev, což lze využít k uchování informací. Za tímto účelem je jedna z feromagnetických vrstev volná a lze v ní měnit směr magnetizace. Druhá z vrstev plní roli referenční, její fixní magnetizace je

dosaženo přilehlou antiferomagnetickou vrstvou na základě výměnné vazby na rozhraní [3]. Jedná se o nejjednodušší podobu tzv. spinového ventilu (spin-valve). [2]

Představení spinového ventilového snímače společností IBM (*International Business Machines Corporation*) roku 1997 jako nového principu funkce čtecích hlav HDD vedlo k okamžitému vzrůstu jejich plošné hustoty úložiště o 100 % za rok. Postupná integrace magnetorezistence a spinové ventilové hlavy poskytlo citlivou a škálovatelnou techniku čtení a v letech 1991 až 2003 přispělo ke zvýšení hrubé kapacity HDD o tři řády ($z \sim 0,1$ na $100 \text{ Gbit} \cdot \text{in}^{-2}$). Tímto byla otevřena cesta k možným menším formátům HDD vhodných jak pro notebooky, tak pro zálohovací kapacitní disky. [2]

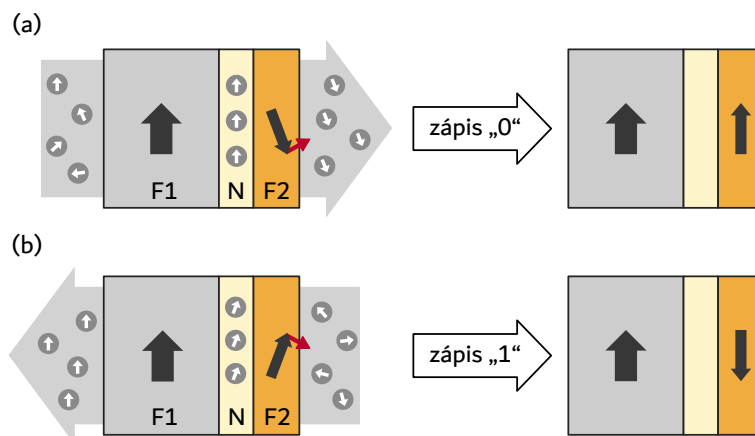


Obr. 1.1: Schematické znázornění principu GMR. F1, F2 – feromagnetické vrstvy, N – nemagnetická vodivá vrstva. (a) Paralelní magnetizace feromagnetických vrstev vede k nízkému elektrickému odporu. (b) Antiparalení magnetizace feromagnetických vrstev vede k vysokému elektrickému odporu.

Na podobném principu jako GMR spočívá jev tunelovací magnetorezistence (*tunnel magnetoresistance* – TMR). TMR nastává v tzv. magnetickém tunelovacím přechodu (*magnetic tunnel junction* – MTJ), což je vrstva dvou feromagnetů spojená velmi tenkou nemagnetickou izolační vrstvou, přes níž mohou elektrony protunelovat. Tunelování je proces, který zachovává spin. Když jsou stavy elektronů na obou stranách bariéry spinově polarizované, pak elektrony snáze naleznou volné stavy, do kterých mohou tunelovat v případě, když jsou magnetizace paralelní, než když jsou antiparalelní. Stejně jako u GMR je tak celkový odpor multivrstvy závislý na vzájemné orientaci feromagnetických vrstev. Při paralelní orientaci je MTJ ve stavu nízkého odporu, při orientaci antiparalelní ve stavu vysokého odporu. Změny odporu odpovídají binárnímu bitu 1 nebo 0. [2]

Na principu MTJ fungují magnetorezistivní paměti (MRAM), které kombinují výhodné vlastnosti, jakými jsou nevolatilita, vysoká rychlost zápisu a čtení, nízká spotřeba energie a škálovatelnost. Mimo to MRAM dokáží pracovat v širokém teplotním rozsahu a jsou odolné vůči radiaci, což z nich dělá vhodné kandidáty např. pro vojenské a vesmírné účely. Nevýhoda MRAM aktuálně spočívá v jejich složité výrobě. [4], [5]

Zápis informace do feromagnetické volné vrstvy byl zpočátku realizován pomocí proudových pulzů indukujících magnetické pole dostatečně velké na to, aby vrstvu přeorientovalo. Takový způsob se však pojí s potřebou příliš vysokých elektrických proudů, a s tím spojených výkonů. Roku 2000 bylo poprvé experimentálně ukázáno, že orientaci magnetizace volné vrstvy lze ovládat také spinově polarizovaným proudem. Tento princip zápisu informace je označován jako



Obr. 1.2: Schematické znázornění principu STT. F1 – fixní feromagnetická vrstva, F2 – volná feromagnetická vrstva, N – nemagnetická vodivá vrstva. V závislosti na směru elektrického proudu je F1 zorientována paralelně (a) nebo antiparalelně (b), což odpovídá zápisu 0 nebo 1.

spinový příčný krut (*spin-transfer torque* – STT; obr. 1.2). STT je založen na výměnné interakci, v důsledku níž mají spiny elektronů tendenci se natočit podél magnetizace materiálu. V důsledku platnosti zákona zachování momentu hybnosti je změna natočení spinů doprovázena změnou směru magnetizace materiálu. Přichází-li tak do tenké vrstvy zmagnetizovaného materiálu spinově polarizovaný proud, dochází ke stočení magnetizace materiálu do směru spinově polarizovaných elektronů. Protože ke ztrátě příčného spinového momentu hybnosti dochází na velmi krátkých vzdálenostech, je STT efektivní v tenkých vrstvách. [2]

Doposud jsme antiferomagnety zmínili pouze jako materiál plnící funkci fixace směru magnetizace feromagnetické vrstvy. V celkovém kontextu spintroniky se však antiferomagnety jeví jako vysoce perspektivní materiály s potenciálně mnohem širším využitím. Antiferomagnety jsou charakteristické dalekosáhlým uspořádáním vnitřních momentů hybnosti tak, že na rozdíl od feromagnetů je jejich celkový magnetický moment nulový (nebo velmi malý ve srovnání s velikostí samotných vnitřních magnetických momentů). Oproti feromagnetům jsou proto informace uložené v antiferomagnetech neviditelné pro běžné magnetické sondy a extrémně odolné vůči okolním magnetickým polím. Zároveň nedochází ke vzájemnému ovlivňování vedlejších antiferomagnetických elementů nezávisle na tom, jak hustě jsou vedle sebe umístěny, což potenciálně vede k možné miniaturizaci, která by byla u feromagnetických součástí nedosažitelná. Nepřítomnost primární makroskopické magnetizace má dále za následek rychlejší dynamiku spinů oproti dynamice ve feromagnetech, s čímž je spojena i potenciálně vyšší rychlost zařízení fungujících na bázi antiferomagnetů. Výhodné a velmi perspektivní vlastnosti antiferomagnetů však obecně vedou k obtížné manipulaci jejich spinů. [3], [6]

Obdobně jako feromagnety při Curierově teplotě ztrácí své magnetické vlastnosti, tak i pro antiferomagnety existuje určitá teplota, nazývaná Néelova, při které nastává fázový přechod z antiferomagnetu na paramagnet.

Zápis informace pomocí vnějšího magnetického pole je u antiferomagnetů v praxi neproveditelný, neboť by v důsledku jejich vnitřního uspořádání spinů

musel být každý atom principiálně obklopen jednou cívkou. Jedním z možných východisek je STT nebo teplem asistovaný magnetický zápis (*heat assisted magnetic recording* – HAMR), kde lokální ohřev materiálu dočasně snižuje energii potřebnou k zápisu. [2], [7]

Uspořádání spinů v antiferomagnetech nelze v důsledku nulovosti jejich celkového magnetického momentu detekovat běžnými magnetometry. Významnou technikou zkoumání vnitřního uspořádání objemových antiferomagnetů je neutronová difrakce, která však není aplikovatelná pro tenké epitaxní filmy tvořící základní jednotky mnoha zařízení, ultrakrátké přechodové jevy nebo prostorově rozlišenou detekci. Za těmito účely se ukazuje jako efektivní nástroj elektromagnetické záření vyvolávající v prošlém nebo odraženém světle od magnetického materiálu magneto-optické jevy, které si v dalších odstavcích krátce popíšeme. [6]

Lineární optické vlastnosti materiálu popisuje tensor permitivity ε_{ij} , který lze rozložit na součet symetrické části $\varepsilon_{ij}^S = \varepsilon_{ji}^S$, která je lichá v magnetizaci, a antisymetrické části $\varepsilon_{ij}^A = -\varepsilon_{ji}^A$, která je sudá v magnetizaci. [6]

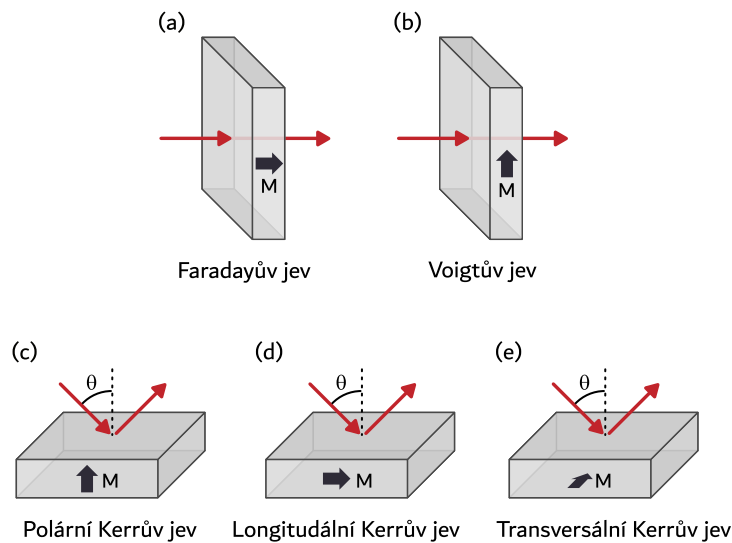
Geometrie následně popsaných magneto-optických jevů je shrnuta na obr. 1.3. Předpokládejme šíření světla ve směru z skrz materiál nacházející se v rovině xy s magnetizací \mathbf{M} podél z . Protože je polarizace \mathbf{P} indukovaná magnetizací \mathbf{M} úměrná vektorovému součinu $\mathbf{M} \times \mathbf{E}$ [8] a obecně $\mathbf{P} = (\varepsilon - \varepsilon_0)\mathbf{E}$ (\mathbf{E} značí vektor elektrické intenzity, ε_0 permitivitu vakua), vznikne v této geometrii v jinak izotropním materiálu s permitivitou ε anizotropie ε_{xy}^A (a tedy i stejná anizotropie v indexu lomu). Tím se naruší degenerace mezi pravo- a levotočivým kruhově polarizovaným světlem. Světlo s opačnou helicitou bude díky anizotropii reálných složek indexu lomu refraktováno odlišně, dochází ke kruhovému dvojlomu. Podobně se anizotropie imaginárních složek indexu lomu projeví odlišnou absorbcí světla s opačnou helicitou. Tento jev je znám jako kruhový dichroismus. U lineárně polarizovaného světla interakcí s takovým materiálem dojde ke stočení roviny polarizace. Je-li anizotropie ε_{xy}^A vyvolána magneticky, jsou uvedené změny v elipticitě a sklonu roviny polarizace v transmisní geometrii známy pod označením magneto-optický Faradayův jev (MOFE; obr. 1.3a) a v reflexní geometrii jako magneto-optický Kerrův jev (MOKE). V závislosti na vzájemné orientaci směru světla dopadajícího na vzorek a magnetizace \mathbf{M} vzorku se rozlišuje (právě popsaný) polární MOKE (obr. 1.3c), longitudální MOKE (obr. 1.3d) s anizotropií ε_{xz}^A a transversální MOKE (obr. 1.3e) s anizotropií ε_{yz}^A . Protože se jedná o jevy lineární v magnetizaci, nelze je pozorovat u plně kompenzovaných kolineárních antiferomagnetů. U takových materiálů jsou totiž uspořádány spinové podmřížky antiparalelně, což v nich vede k vyvolání vzájemně opačného jevu a celkovému vynulování efektu. Jedná se však o silný nástroj při výzkumu feromagnetů a jak se ukazuje, tak i nekolineárních antiferomagnetů. [6], [8], [9]

Podobný magneto-optický efekt pozorujeme při průchodu světla vzorkem vykazující anizotropii ε_{xy}^S , která je kvadratická v magnetizaci. Je-li orientace spinů v jinak izotropním materiálu antiferomagneticky uspořádána podél x-ové osy (tj. $\varepsilon_{xx}^S \neq \varepsilon_{yy}^S$), pak při průchodu světla vzorkem dochází v důsledku odlišné refrakce a absorpce světla v x-ovém a y-ovém směru k tzv. lineárnímu dvojlomu, resp. lineárnímu dichroismu. Lineární dichroismus bývá obvykle označován jako Voigtův jev (obr. 1.4a). Lze jej měřit v rotaci polarizace $\Delta\beta$, která je popsána vztahem [10]

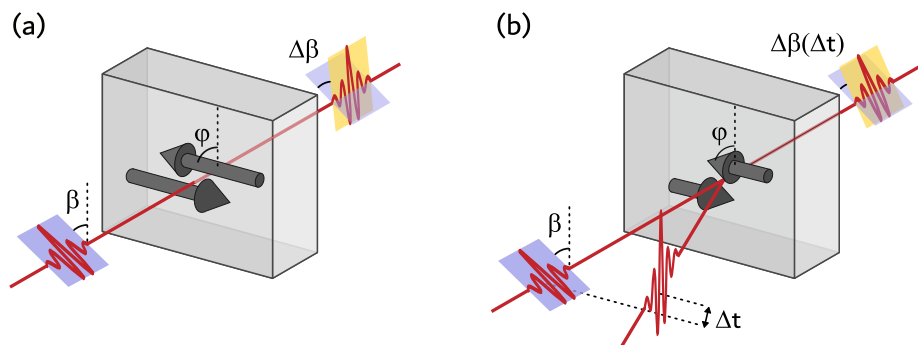
$$\Delta\beta = P \sin(2(\varphi - \beta)) + D, \quad (1.1)$$

kde P se škáluje kvadraticky s projekcí magnetizace \mathbf{M} do roviny kolmé ke směru šíření světla, β je sklon roviny polarizace příchozího světla, φ orientace vektoru magnetizace \mathbf{M} a D je polarizačně nezávislé pozadí ze substrátu, na kterém je zkoumaný vzorek. [6], [10]

Stejně jako u ostatních magneto-optických jevů lze pomocí Voigtova jevu studovat dynamiku vnitřní magnetické struktury vzorku metodou excitace a sondování (obr. 1.4b). Excitační laserový puls vyvolá ve vzorku změnu v magnetické struktuře, což se projeví ve stočení $\Delta\beta$ polarizační roviny sondovacího svazku procházejícího vzorkem, které je závislé na časovém zpoždění Δt mezi excitačním a sondovacím pulsem. Z kvadratického charakteru anizotropie je Voigtův jev pozorovatelný i u plně kompenzovaných kolineární antiferomagnetů. [6], [10], [11]



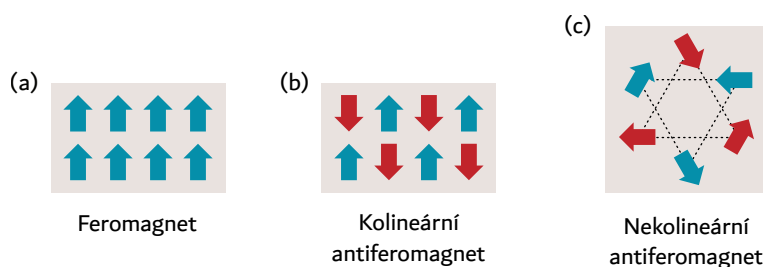
Obr. 1.3: Geometrie magneto-optických jevů. \mathbf{M} je vektor magnetizace feromagnetu nebo v případě Voigtova jevu také jedné z podmřížek kolineárního antiferomagnetu.



Obr. 1.4: Schematické znázornění Voigtova jevu (a) a metody excitace a sondování (b). β , $\Delta\beta$ – sklon a stočení polarizační roviny sondovacího svazku před, resp. po průchodu vzorkem, φ – orientace vnitřních magnetických momentů ve vzorku, Δt – vzájemné časové zpoždění mezi pulsy sondovacího a excitačního svazku.

1.2 Nekolineární antiferomagnety

Antiferomagnetická spintronika se stává atraktivním kandidátem pro budoucnost elektroniky. Vedle kolineárních antiferomagnetů, které jsou charakteristické vzájemně antiparalelním uspořádáním spinových podmřížek, se pro praktické účely jeví perspektivní nekolineární antiferomagnety, u nichž jsou jednotlivé spinové podmřížky vůči sobě uspořádány nekolineárně (obr. 1.5). U nekolineárních antiferomagnetů totiž dochází ke kombinaci výhodných vlastností feromagnetů a antiferomagnetů. Mezi antiferomagnety s koplanárními nekolineárními magnetickými strukturami řadíme např. hexagonální Mn_3X ($X = Sn, Ge, Ga$), kubické Mn_3X ($X = Ir, Pt, Rh$) nebo antiperovskity Mn_3AN ($A = Ga, Sn, Ni$). [12]



Obr. 1.5: Srovnání možného uspořádání spinových podmřížek feromagnetu (a), kolineárního antiferomagnetu (b) a nekolineárního antiferomagnetu (c).

V důsledku linearit v magnetizaci není magneto-optický Kerrův jev (MOKE) pozorovatelný v plně kompenzovaných kolineárních antiferomagnetech, čímž tyto materiály přicházejí o účinný nástroj pro jejich výzkum a aplikaci v magneto-optických technologiích. Přítomnost obřího MOKE v nekolineárním antiferomagnetu byla poprvé pozorována roku 2018, a to ve vzorku Mn_3Sn . I na vzdory jeho slabé celkové magnetizaci bylo ukázáno, že je pozorovaný jev především důsledkem uspořádání spinových podmřížek. Teoretické výpočty demonstrují, že feroické uspořádání magnetických oktupólů umožňuje velký MOKE i v plně kompenzovaných nekolineárních antiferomagnetech. Pozorování MOKE v nekolineárních antiferomagnetech implikuje možné urychlení vývoje budoucích paměťových zařízení na základě jejich dobrých optických, magnetických a elektrických vlastností a zároveň, v porovnání s izolátory, i jejich velmi vysoké reflektivity. [9]

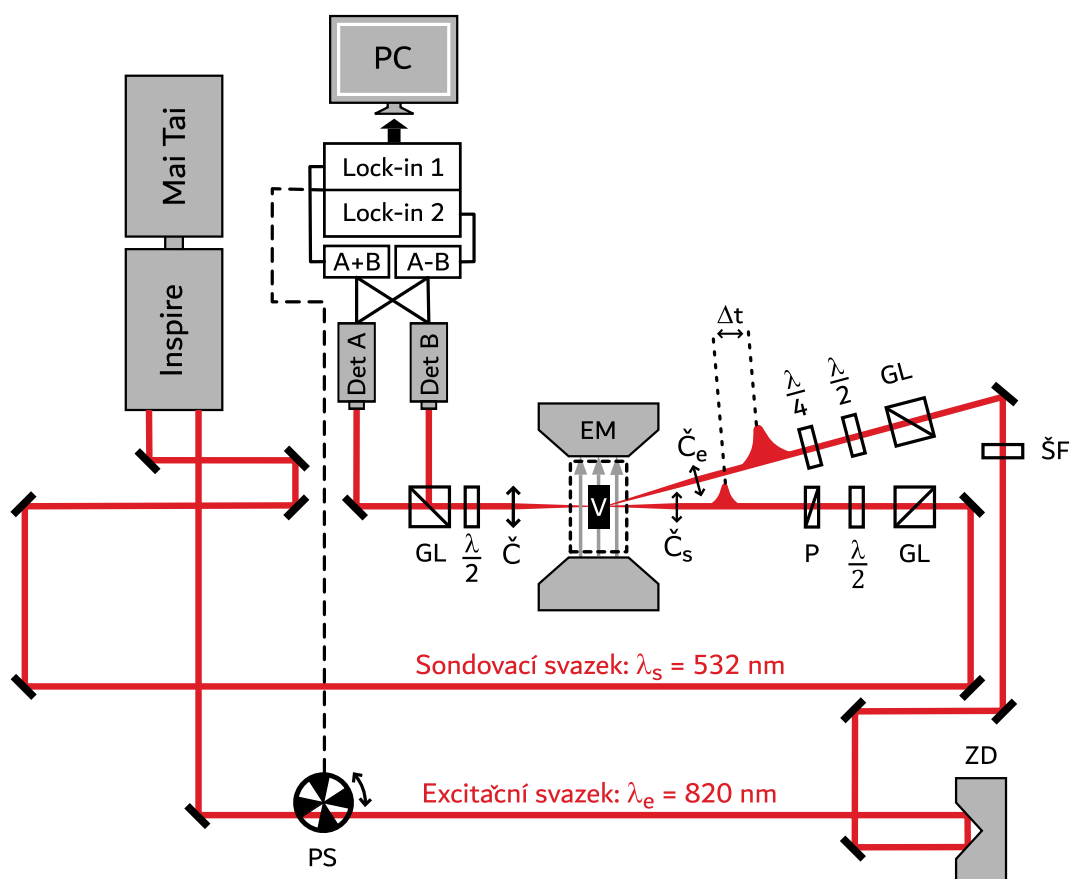
Roku 2021 byl v inverzní trojúhelníkové struktuře nekolineárního antiferomagnetu Mn_3Sn pozorován také Voigtův jev, jehož přítomnost byla do té doby známa pouze v antiferomagnetech kolineárních. Provedený experiment zároveň poukázal na teplotně necitlivou ultrarychlou manipulaci se spiny, což implikuje možnost existence vysokorychlostních spintronických zařízení pracujících v širokém rozsahu teplot nebo zařízení vyžadující spinové přepínání v blízkosti Neelovy teploty. [13]

Dalším zajímavým materiálem jsou tenké filmy Mn_3NiN , kde byl roku 2018 poprvé experimentálně pozorován obří piezomagnetický jev. Tento výsledek otevírá cestu k možnému vývoji piezoelektrických multivrstev umožňující 180° rotaci magnetizace za nepřítomnosti aplikovaného magnetického pole, což nabízí významnou změnu oproti současným technologiím založeným na magnetostrickci. [14]

2. Experimentální uspořádání

Cílem práce je metodou excitace a sondování (obr. 1.4b) studovat vzorek ne-kolineárního antiferomagnetu Mn_3GaN a zjistit, zda je v něm možné excitačním laserovým pulsem vybudit dynamické změny v jeho magnetickém uspořádání. Tyto možné dynamické změny budeme detekovat ve změnách vlastností vzorkem procházejícího sondovacího svazku, kde by se měly projevit.

Experimenty byly provedeny v Laboratoři OptoSpintroniky na MFF UK pomocí již sestavené optické sestavy. Popis experimentu podobného našemu je detailně popsán např. v [10]. Námí provedený experiment (schéma na obr. 2.1) se od něj liší v následujícím: experiment je tzv. nedegenerovaný (tj. je použita odlišná vlnová délka excitačního a sondovacího svazku) a je měřeno v transmisní geometrii (tj. studujeme sondovací svazek prošlý vzorkem). Pro úplnost si i zde popíšeme jednotlivé části experimentálního uspořádání a způsoby detekce měřeného signálu.



Obr. 2.1: Schéma metody excitace a sondování v použité transmisní geometrii. Mai Tai – laserový systém, Inspire – optický parametrický oscilátor, PS – mechanický přerušovač svazku, ZD – zpožďovací dráha, ŠF – šedý filtr, GL – Glan-Laser polarizační hranol, $\lambda/2$ – půlvlnná destička, $\lambda/4$ – čtvrtvlnná destička, \check{C}_e , \check{C}_s – čočky s mohutností 20 a 40 D, V – vzorek v kryostatu, Č – spojná čočka, EM – elektromagnet, Det A, B – křemíkové detektory, Lock-in 1, 2 – fázově citlivé zesilovače, PC – počítač.

Generace femtosekundových laserových pulsů s opakovací frekvencí 82 MHz a vlnovou délkou 820 nm je zajištěna titan-sařfrovým laserem Mai Tai HP (Spectra Physics). Pulsy dále prochází optickým parametrickým oscilátorem Inspire HF (Spectra Physics), odkud vychází excitační svazek s nezměněnou vlnovou délkou $\lambda_e = 820$ nm a sondovací svazek s modifikovanou vlnovou délkou $\lambda_s = 532$ nm. Excitační svazek je přerušován mechanickým přerušovačem s frekvencí $f \sim 1,5$ kHz. Následně je odkloněn do zpožďovací dráhy, která představuje posuvnou soustavu zrcadel a zajišťuje změnu vzájemného časového zpoždění mezi laserovými pulsy v excitačním a sondovacím svazku. Svazek je dále veden přes posuvný šedý filtr umožňující spojitě měnit jeho výkon do soustavy optických prvků kontrolující jeho polarizaci a čočkou s mohutností 20 D fokusován na vzorek. Polarizaci sondovacího svazku lze také ovládat optickými prvky, jeho výkon je roven asi 3 mW a na vzorek je fokusován čočkou s optickou mohutností 40 D. Úhel mezi excitačním a sondovacím svazkem v místě dopadu na vzorek činí asi 15° . Oba svazky jsou vedeny tak, aby jejich optické dráhy byly srovnatelné, a manipulací zpožďovací dráhy bylo možné docílit časového překryvu pulsů ve vzorku.

Vzorek se nachází v kryostatu umístěném mezi dvěma póly elektromagnetu, který je nastavením procházejícího elektrického proudu schopen generovat magnetické pole v rozsahu -530 až $+530$ mT. Sondovací svazek procházející vzorkem je čočkou kolimován do tzv. optického můstku, jehož funkce je následující. Pomocí Glan-Laser polarizačního hranolu je svazek rozdělen do dvou ramen tak, že jedním ramenem prochází světlo s s lineární polarizací, druhým s p lineární polarizací. Na konci každého ramene je detektor s křemíkovou fotodiodou S1336, což umožňuje s a p polarizaci detekovat odděleně. Signál z detektorů je následně veden do dvou logických obvodů, jejichž výstupem je součet a rozdíl intenzit detekovaných signálů. Tyto elektrické signály jsou poté vedeny do fázově citlivých zesilovačů propojených s přerušovačem excitačního svazku tak, že příslušná referenční frekvence je dána frekvencí f přerušování excitačního svazku a následně jsou uloženy do počítače.

Budeme měřit časově rozlišenou dynamiku přechodné transmise $\Delta T/T(\Delta t)$ vzorku a časově rozlišenou dynamiku stočení roviny polarizace $\Delta\beta(\Delta t)$ sondovacího svazku (označovanou dále také jako magneto-optický signál). K tomu použijeme vztahy [10]

$$\frac{\Delta T}{T}(\Delta t) = \frac{(\Delta I_s + \Delta I_p)(\Delta t)}{I_s^{\text{off}} + I_p^{\text{off}}}, \quad (2.1)$$

$$\Delta\beta(\Delta t) \approx \frac{(\Delta I_s - \Delta I_p)(\Delta t)}{2(I_s^{\text{off}} + I_p^{\text{off}})}, \quad (2.2)$$

kde $(\Delta I_s \pm \Delta I_p)(\Delta t)$ je součet (rozdíl) detekovaných změn intenzit signálů z obou ramen optického můstku pro vzájemné časové zpoždění Δt excitačního a sondovacího pulsu. I_s^{off} a I_p^{off} značí intenzitu signálu detekovanou v jednotlivých ramenech před dopadem excitačního svazku (index off odkazuje na zablokovanou dráhu excitačního svazku). Použitá aproximace je platná pro malé $\Delta\beta$, což je však v experimentech tohoto typu prakticky vždy splněno. Vztahy (2.1) a (2.2) jsou (v reflexní geometrii) odvozeny např. v [15].

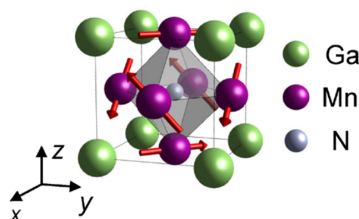
Ačkoliv bylo experimentální uspořádání s optickým můstkem vyvinuto především s cílem detekování malého rozdílu signálů a potlačení celkového šumu, je

přítomnost optického můstku velmi výhodná také z důvodu, že umožňuje současné měření $\Delta T/T(\Delta t)$ a $\Delta\beta(\Delta t)$. [15]

Z charakteru experimentu a rovnic (2.1) a (2.2) plyne, že na počátku každého měření je před dopadem excitačního svazku třeba provést vyvážení optického můstku. Optický můstek je vyvážen při shodné intenzitě svazků v obou ramelech. Toho se docílí zablokováním excitačního svazku, umístěním mechanického přerušovače svazku do dráhy sondovacího svazku a natočením $\lambda/2$ destičky před Glan-Laser polarizačním hranolem tak, že je rozdílový signál $I_s^{\text{off}} - I_p^{\text{off}}$ nulový. V tomto uspořádání je za účelem výpočtu $\Delta T/T$ a $\Delta\beta$ dle vztahů (2.1) a (2.2) zaznamenán také součtový signál $I_s^{\text{off}} + I_p^{\text{off}}$. [10], [15]

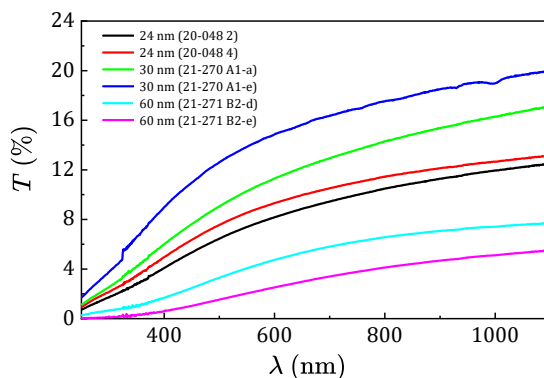
3. Studované vzorky

V rámci naší práce jsme studovali nekolineární antiferomagnet Mn_3GaN , jehož struktura je znázorněna na obr. 3.1. Měli jsme k dispozici šest vzorků o tloušťkách 24 nm, 30 nm a 60 nm vypěstovaných na substrátu MgO ve firmě LoMaRe Technologies Ltd. (Velká Británie). Vzorky byly připraveny metodu pulsní laserové depozice (PLD). PLD je technika fyzikálního napařování, kde se k nanášení tenkých vrstev materiálu na povrch substrátů využívá pulzního laserového svazku. Princip spočívá v odpaření materiálu pomocí krátkých laserových pulzů a jeho následným usazením na povrchu substrátu, kde vytváří tenkou vrstvu. Vzorky mají obdélníkový tvar s hranami podél krystalografických směrů $[100]$ a $[010]$.

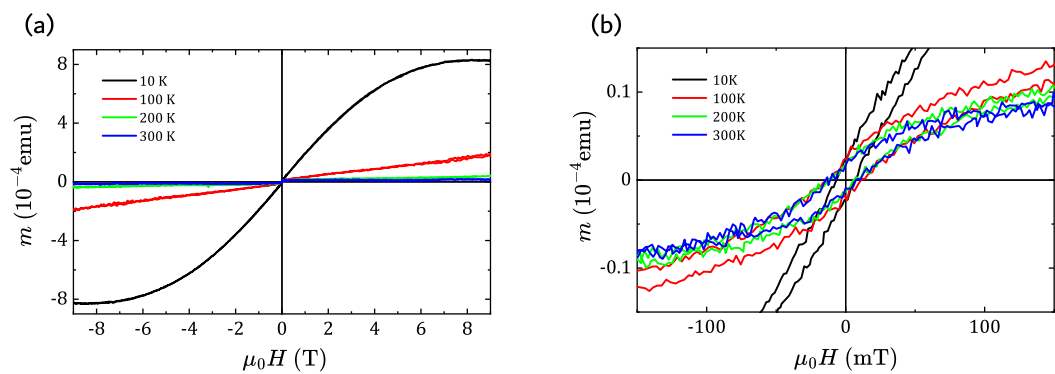


Obr. 3.1: Magnetická struktura Mn_3GaN s viditelným inverzním trojúhelníkovým uspořádáním spinů. [16]

V první fázi práce jsme spektrofotometrem na PŘF UK změřili transmisní spektra všech vzorků (obr. 3.2). Na základě nich byl (s uvážením vlnové délky sondovacího svazku $\lambda_s = 532$ nm) pro další měření vybrán vzorek 21-270 A1-e s 30 nm tloušťkou vrstvy Mn_3GaN , protože disponuje relativně vysokou hodnotou transmise ($T \sim 13.5$ %), která je nezbytná pro naše měření v transmisní geometrii. K tomuto vzorku tloušťky 30 nm nám byla z Fyzikálního ústavu MFF UK poskytnuta magnetická charakterizace pomocí magnetometru VSM (*vibrating-sample magnetometer*; obr. 3.3) [17]. Dle této charakterizace vzorek při teplotách vyšších než 100 K vykazuje nízké hodnoty magnetizace, z čehož lze usoudit, že se nachází v antiferomagnetické fázi. Při teplotě 10 K je ale jeho magnetický moment znatelně větší, což poukazuje na možnou změnu magnetického uspořádání pro teploty nižší než 100 K.



Obr. 3.2: Transmisní spektra vzorků Mn_3GaN různých tlouštěk. V závorce je uvedeno označení vzorku.



Obr. 3.3: Magnetická charakterizace vzorku tloušťky 30 nm pomocí VSM magnetometrie při různých teplotách. [17]

4. Výsledky měření

Experimenty byly provedeny ve dvou základních uspořádání. V prvním uspořádání sondovací svazek dopadal kolmo na vzorek (kap. 4.1), ve druhém uspořádání pod úhlem 15° (kap. 4.2). Vzorek byl v kryostatu umístěn tak, že krystalografický směr $[100]$ odpovídá úhlu $\beta = 45^\circ$.

V následujících kapitolách budou použita značení θ a β pro sklon roviny polarizace excitačního, resp. sondovacího svazku dopadajícího na vzorek (příčměž úhel 0° odpovídá vertikálnímu směru v laboratorní soustavě souřadné) a B pro magnetické pole generované elektromagnetem.

4.1 Kolmý dopad sondovacího svazku na vzorek

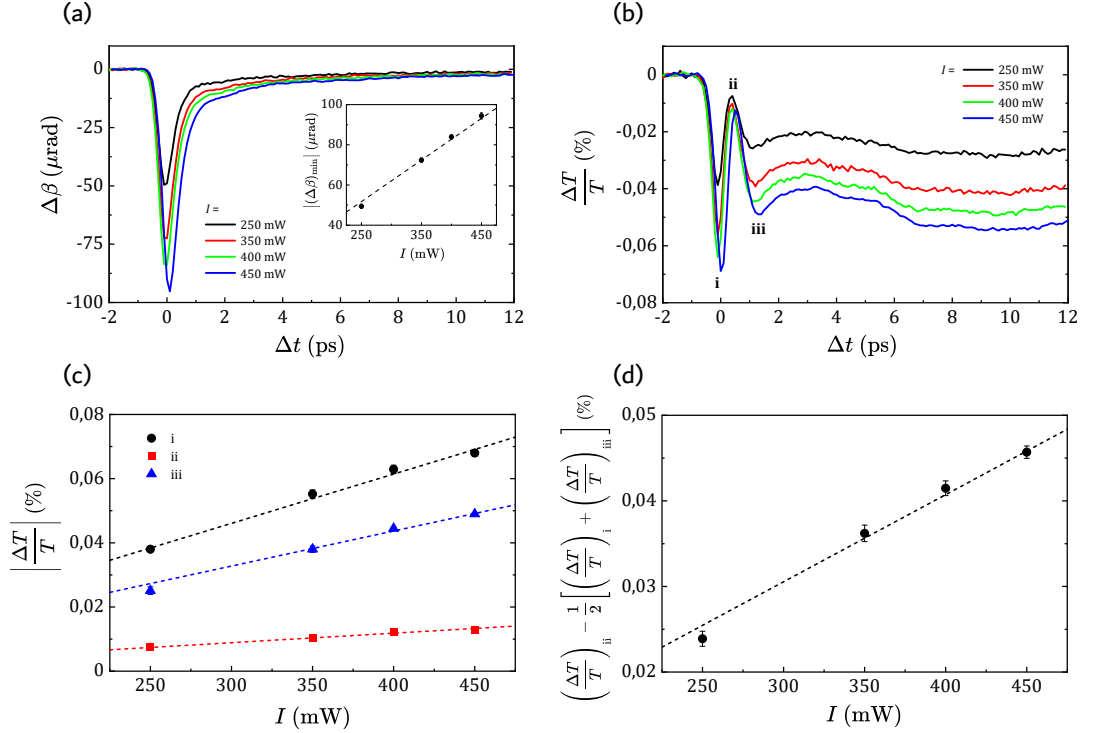
Charakterizace 30 nm vzorku Mn_3GaN pomocí VSM magnetometrie (obr. 3.3) ukazuje, že pro teplotu 100 K je jeho magnetický moment blízký nule, z čehož je patrné, že se při této teplotě nachází v antiferomagnetické fázi. Proto byla za účelem studia antiferomagnetu Mn_3GaN nastavena teplota v kryostatu na 100 K a první fáze měření proběhla právě při této teplotě.

Nejprve byl hledán optimální výkon I excitačního svazku. Byla změřena časově rozlišená dynamika stočení roviny polarizace $\Delta\beta$ sondovacího svazku a časově rozlišená dynamika přechodné transmise $\Delta T/T$ vzorku pro různé hodnoty I (grafy na obr. 4.1a a 4.1b). Výkon I byl nastavován posuvem šedého filtru umístěného v dráze excitačního svazku.

V grafu na obr. 4.1a lze po počátečním vybuzení vzorku z dynamické rovnováhy pozorovat očekávaný monotónní pokles velikosti $\Delta\beta$ s Δt . Do vloženého grafu na obr. 4.1a jsou vyneseny odečtené velikosti špičkových hodnot $\Delta\beta$ v závislosti na I . Tato závislost vykazuje lineární charakter.

V případě časové dynamiky $\Delta T/T$ pozorujeme zajímavou silnou nemonotónnost (obr. 4.1b). Za účelem analýzy závislosti velikosti počátečního zákmitu signálu $\Delta T/T(\Delta t)$ na I byly do naměřených závislostí v grafu na obr. 4.1b vyneseny body (*i*, *ii*, *iii*) odpovídající pořadě lokálnímu minimu, maximu a opět minimu $\Delta T/T(\Delta t)$. Odečtené velikosti hodnot $\Delta T/T$ byly v těchto bodech v závislosti na I znázorněny do grafu na obr. 4.1c, kde lze jasně vidět jejich lineární průběh v intenzitě. Velikost zákmitu byla pro jednoduchost definována jako rozdíl hodnoty $\Delta T/T$ v maximu (bod *ii*) a průměrné hodnoty $\Delta T/T$ v minimech (body *i* a *iii*) a je v závislosti na I zobrazena v grafu na obr. 4.1d. Z grafu na obr. 4.1d jednoznačně plyne, že velikost zákmitu je lineární v intenzitě, a tedy vykazuje stejné chování, jako závislost velikosti špičkových hodnot $\Delta\beta$ na I .

V důsledku naměřené lineární závislosti $\Delta\beta$ na I byl za účelem maximalizace signálu určen optimální výkon excitačního svazku jako maximální možný, tedy $I = 450$ mW. Protože maximalizací výkonu laserového svazku dopadajícího na vzorek nebylo dosaženo konce lineárního režimu měřeného magneto-optického signálu $\Delta\beta$, pokusili jsme se následně zvýšit plošnou hustotu dopadajícího záření zmenšením plochy svazku na vzorku zlepšením fokusace excitačního svazku na vzorek předozadním posunem příslušné fokusující čočky (\check{C}_e na obr. 2.1). Tato

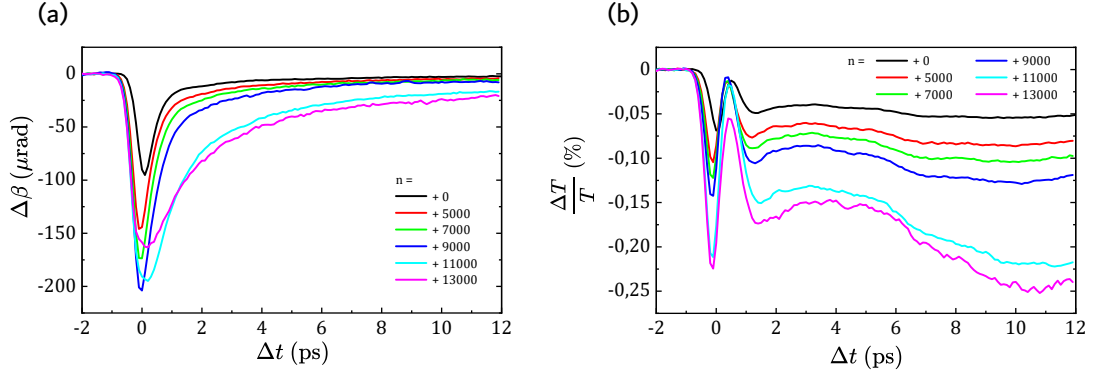


Obr. 4.1: Hledání optimálního výkonu excitačního svazku. Při teplotě 100 K. $B = 0$ mT, $\theta = 0^\circ$, $\beta = 135^\circ$. (a) Časově rozlišená dynamika stočení polarizace $\Delta\beta$ pro různé výkony I excitačního svazku. Vložený obrázek: Intenzitní závislost špičkové hodnoty $\Delta\beta$ (body) spolu s lineární závislostí. (b) Časově rozlišená dynamika přechodné propustnosti $\Delta T/T$ pro různé I , včetně pomocných bodů i , ii a iii . (c) Závislost velikosti $\Delta T/T$ na I v bodech i , ii a iii (body) spolu s lineární závislostí (čára). (d) Závislost velikosti počátečního zákmitu $\Delta T/T(\Delta t)$ na I , která byla vypočítána z dat uvedených v části (c). Chybové úsečky byly odhadnuty z velikosti šumu v měřených signálech.

čochka byla umístěna na posuvném držáku a její posun byl realizován automatizovaně v jednotkách počtu n vykonaných kroků posuvným držákem. Naměřené závislosti $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$ jsou pro různé n uvedeny v grafech na obr. 4.2. Obr. 4.2a ukazuje, že pro $n \geq 11000$ dochází ke zpomalování dynamiky v důsledku příliš vysoké fokuse excitačního svazku projevující se v silném zahřívání vzorku (viz dále uvedená teplotní závislost v obr. 4.7a). Optimální poloha čočky byla stanovena pro $n = 7000$, neboť tato poloha maximalizuje měřené signály, ale stále ještě odpovídá oblasti linearoty, kdy nedochází ke zpomalení dynamiky měřeného magneto-optického signálu.

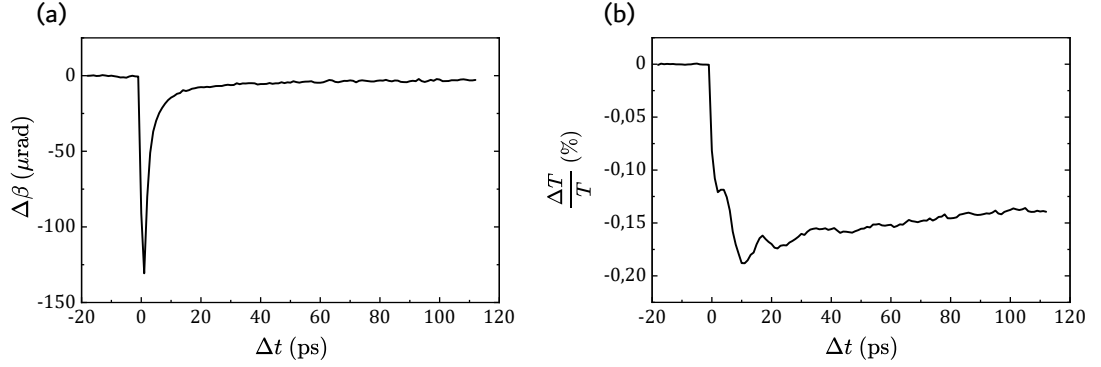
Ideální podmínky pro další měření tak byly nalezeny jako $I = 450$ mW a $n = 7000$. Tyto podmínky odpovídají FWHM (*full width at half maximum* – plná šířka v polovině maxima) stopy excitačního svazku $\sim 9 \mu\text{m}$ na vzorku, přičemž velikost sondovacího svazku je $< 3 \mu\text{m}$. Tomu odpovídá plošná hustota energie $J \sim 70 \mu\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$ excitačního svazku.

Následně byly změřeny závislosti $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$ v delší (~ 120 ps) časové škále (grafy na obr. 4.3). Ukázalo se, že měřený magneto-optický signál $\Delta\beta$ odezní asi za 100 ps (obr. 4.3a), zatímco měřený signál $\Delta T/T$ odezní za dobu podstatně delší (obr. 4.3b). Navíc v signálu $\Delta T/T(\Delta t)$ lze pozorovat oscilující



Obr. 4.2: Vliv fokusace excitačního svazku na měřené signály. Při teplotě 100 K. $B = 0$ mT, $\theta = 0^\circ$, $\beta = 135^\circ$. Časově rozlišená dynamika $\Delta\beta$ (a) a $\Delta T/T$ (b) v závislosti na předozadním posuvu fokusující čočky definovaným počtem kroků n vykonaných posuvným držákem čočky.

složku, avšak její souvislost s magnetickým uspořádáním není zjevná, neboť není současně viditelná v signálu $\Delta\beta(\Delta t)$. Proto jsme se v následujících měření omezili na kratší (~ 12 ps) časové škály.



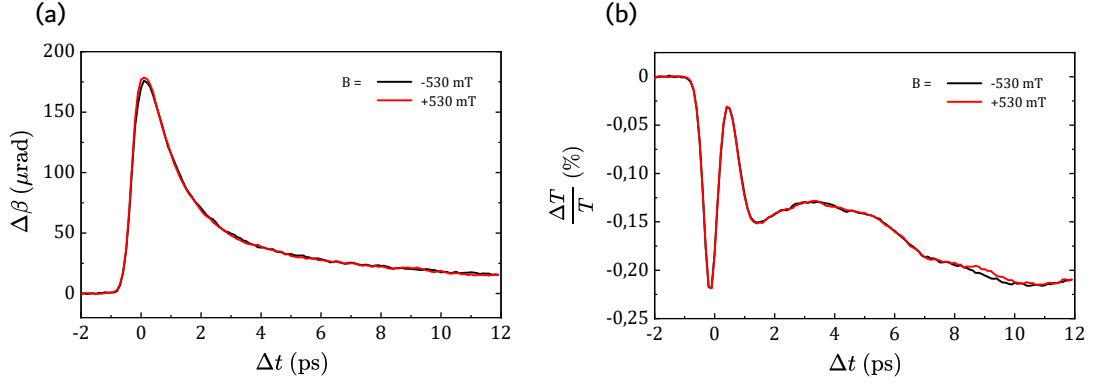
Obr. 4.3: Delší časová škála. Při teplotě 100 K. $B = -530$ mT, $\theta = 0^\circ$, $\beta = 135^\circ$. Časově rozlišená dynamika $\Delta\beta$ (a) a $\Delta T/T$ (b).

V další sadě měření byl zkoumán vliv magnetického pole B na signály $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$. Měření bylo uskutečněno pro maximální velikost magnetického pole v obou směrech, tj. $B = 530$ mT a $B = -530$ mT. Jak ukazují grafy na obr. 4.4, naměřené signály $\Delta\beta(\Delta t)$ i $\Delta T/T(\Delta t)$ nevykazují na vnějším magnetickém poli žádnou závislost.

Za účelem určit, zda, a případně od jakých časových zpoždění Δt , je $\Delta\beta$ magnetického původu, bylo provedeno měření excitačním svazkem vyvolané změny elipticity. Tento postup je založen na následujícím principu (viz kapitoly 4.3 a 4.4 v [7]). Metodou excitace a sondování jsou měřeny excitačním pulsem vyvolané změny stočení $\Delta\beta$ polarizační roviny a změny elipticity $\Delta\gamma$, pro něž platí vztahy

$$\Delta\beta = \Delta f_\beta M + f_\beta \Delta M, \quad (4.1)$$

$$\Delta\gamma = \Delta f_\gamma M + f_\gamma \Delta M, \quad (4.2)$$

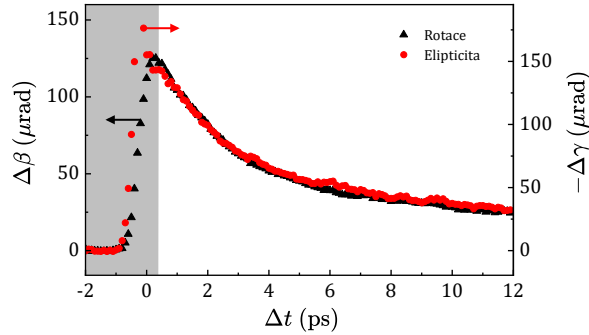


Obr. 4.4: Vliv vnějšího magnetického pole. Při teplotě 100 K. $\theta = 90^\circ$, $\beta = 135^\circ$. Časově rozlišená dynamika $\Delta\beta$ (a) a $\Delta T/T$ (b) vzorku v magnetickém poli $B = -530$ mT a $B = 530$ mT.

kde M je magnetizace a f_β a f_γ obecně různé funkce závislé na komplexním indexu lomu. Mají-li $\Delta\beta$ a $\Delta\gamma$ původ ve změně magnetizace, dominují poté ve vztazích (4.1) a (4.2) členy s ΔM . Poté však $\Delta\beta$ a $\Delta\gamma$ musí vykazovat až na velikost stejný průběh v závislosti na časovém zpoždění Δt . Nemají-li naopak měřené signály $\Delta\beta$ a $\Delta\gamma$ magnetický původ, dominují v rovnicích (4.1) a (4.2) první členy a $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta\gamma(\Delta t)$ se liší jak tvarem, tak velikostí. [7]

Měření elipticity bylo provedeno vložení čtvrtvlnné destičky před půlvlnnou destičku v detekčním rameni (obr. 2.1) a natočením jejího směru snadného průchodu do směru sklonu roviny polarizace sondovacího svazku.

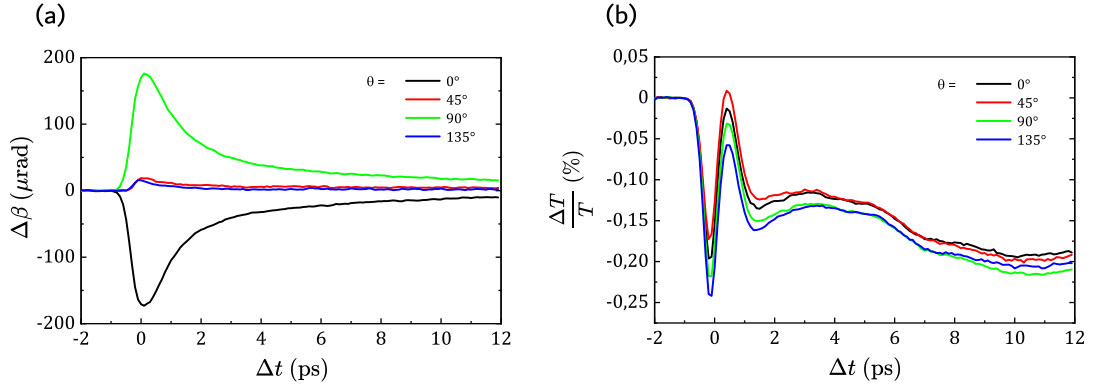
Změřené závislosti $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta\gamma(\Delta t)$ jsou zobrazeny v grafu na obr. 4.5, odkud jasně plyne, že v oblasti $\Delta t \geq 0,4$ ps je magneto-optický signál magnetického původu, zatímco pro $\Delta t < 0,4$ ps (šedá část grafu) signál magnetického původu není (hodnoty $\Delta\beta$ a $\Delta\gamma$ závisí na Δt jinak).



Obr. 4.5: Elipticita a rotace. Při teplotě 100 K. $B = -530$ mT, $\theta = 0^\circ$, $\beta = 45^\circ$. Časově rozlišená dynamika rotace $\Delta\beta$ a elipticity $\Delta\gamma$. Pro $\Delta t \geq 0,4$ ps (bílá část) jsou měřené signály magnetického původu.

Dále byl studován vliv sklonu roviny polarizace θ excitačního svazku na měřené signály $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$. Změřené závislosti $\Delta\beta(\Delta t)$ v grafu na obr. 4.6a ukazují, že $\Delta\beta(\Delta t)$ velmi silně závisí na lineární polarizaci excitačního svazku. Zatímco pro $\theta = 45^\circ$ a $\theta = 135^\circ$ je změřený magneto-optický signál $\Delta\beta$ malý, pro $\theta = 90^\circ$ a $\theta = 0^\circ$ jsou magneto-optické signály velmi silné a vzájemně opačného

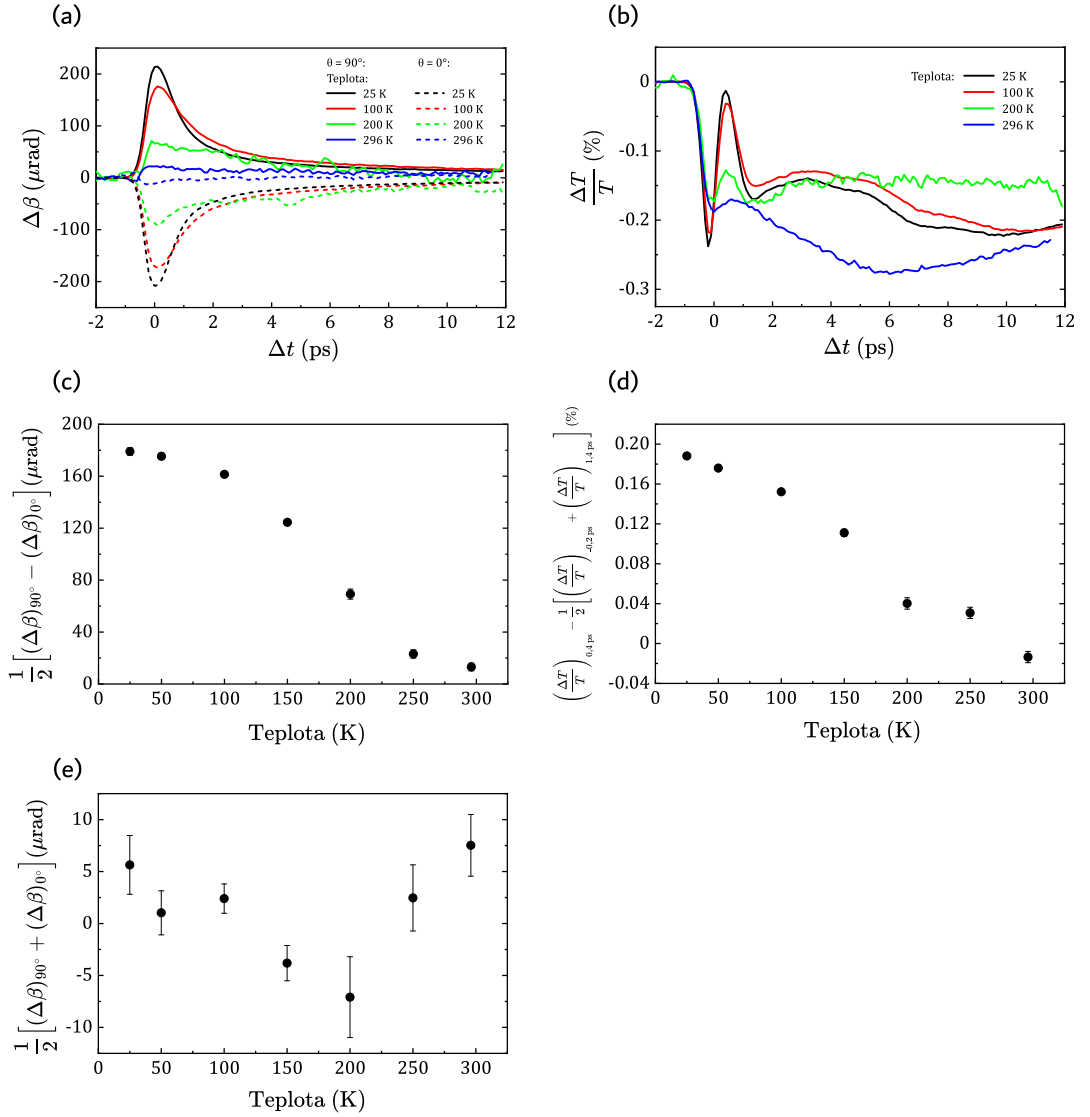
znaménka. Toto jasně ukazuje, že měřené magneto-optické signály jsou netermální původu, což je velice zajímavé. K podobnému výsledku vedlo nedávné měření $\Delta\beta(\Delta t)$ ve vzorku jiného nekolineárního antiferomagnetu Mn_3NiN a bude o něm detailněji pojednáno v diskuzi v kap. 5. Závislost $\Delta T/T(\Delta t)$ na θ (obr. 4.6b) je podstatně slabší a z jejího charakteru se zdá, že se jedná o projev odlišné odrazivosti vzorku při nekolmém dopadu různě polarizovaného excitačního svazku, jak plyne z Fresnelových rovnic.



Obr. 4.6: Vliv polarizace excitačního svazku. Při teplotě 100 K. $B = -530$ mT, $\beta = 135^\circ$. Časově rozlišená dynamika $\Delta\beta$ (a) a $\Delta T/T$ (b) pro několik sklonů θ polarizační roviny excitačního svazku.

Za účelem dalšího ověření magnetického původu signálu $\Delta\beta$ byly měřeny závislosti $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$ při různých teplotách. Néelova teplota ve vzorku odpovídá přibližně pokojové teplotě, tj. 300 K, z čehož plyne, že v případě magnetického původu měřeného signálu by měl tento signál v blízkosti teploty 300 K vymizet. V grafu na obr. 4.7a jsou zobrazeny naměřené závislosti $\Delta\beta(\Delta t)$ při několika teplotách pro sklon roviny polarizace excitačního svazku $\theta = 0^\circ$ a $\theta = 90^\circ$. Z naměřených závislostí byly odečteny hodnoty $\Delta\beta$ v $\Delta t = 0,4$ ps a do grafu na obr. 4.7c vynesena pro každou z měřených teplot polovina rozdílu signálů $\Delta\beta$ při $\theta = 0^\circ$ a $\theta = 90^\circ$ a do grafu na obr. 4.7e polovina jejich součtu. Body v grafu na obr. 4.7c odpovídají signálu závislému na lineární polarizaci excitačního svazku a dle očekávání vykazují s rostoucí teplotou klesající charakter. Ani za pokojové teploty však není dosaženo nulové hodnoty signálu, což ukazuje, že Néelova teplota bude ve studovaném vzorku pravděpodobně vyšší než 300 K. Signál na obr. 4.7e je na polarizaci nezávislý. Tento signál je velice slabý a nevykazuje žádnou systematickou závislost. V grafu na obr. 4.7b jsou zobrazeny naměřené závislosti $\Delta T/T(\Delta t)$ při několika teplotách pro $\theta = 90^\circ$. S cílem kvantitativního popsání vývoje velikosti počátečního zákmitu s teplotou zde definujeme velikost zákmitu jako rozdíl hodnoty v maximu (definovaného časem $\Delta t = 0,4$ ps) a průměrné hodnoty v okolních minimech (definovaných časy $\Delta t = -0,2$ ps a $\Delta t = 1,4$ ps). Velikosti zákmitu jsou v závislosti na měřených teplotách zobrazeny v grafu na obr. 4.7d. Z podobného chování bodů v grafech na obr. 4.7c a 4.7d usuzujeme, že také pozorovaný zákmit je magnetického původu.

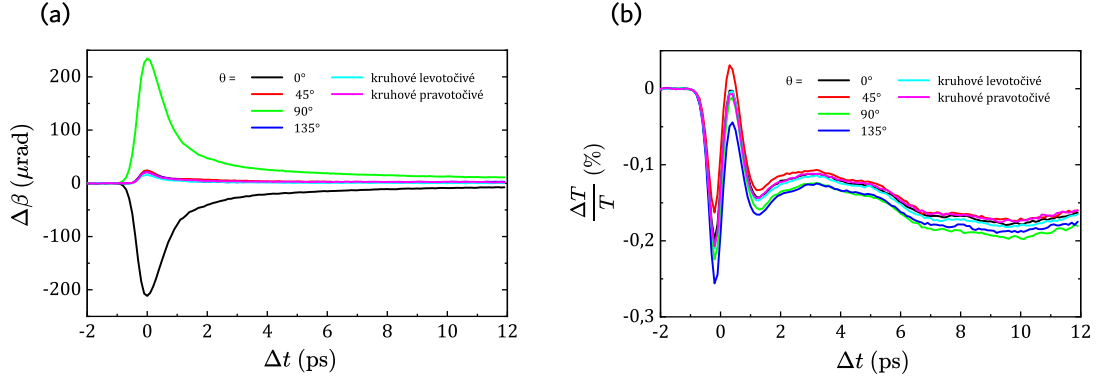
V další části měření byla nastavena teplota kryostatu na 25 K. Dle charakterizace pomocí VSM magnetometrie (obr. 3.3) bylo očekáváno možné odlišné magnetické chování vzorku v porovnání s chováním při teplotě 100 K. Změření



Obr. 4.7: Teplotní závislost. $B = -530$ mT, $\beta = 135^\circ$. Časově rozlišená dynamika $\Delta\beta$ (a) a $\Delta T/T$ (b) při odlišných teplotách vzorku. Na polarizaci excitačního svazku závislý (c) a nezávislý (e) signál. (d) Velikost počátečního zákmitu v závislosti $\Delta T/T(\Delta t)$ v závislosti na teplotě. Chybové úsečky byly odhadnuty z velikosti šumu v měřených signálech.

závislostí $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$ pro různé sklony roviny polarizace θ excitačního svazku však ukázalo, že vzorek při teplotě 25 K (obr. 4.8) vykazuje stejnou závislost na θ jako při teplotě 100 K (obr. 4.6).

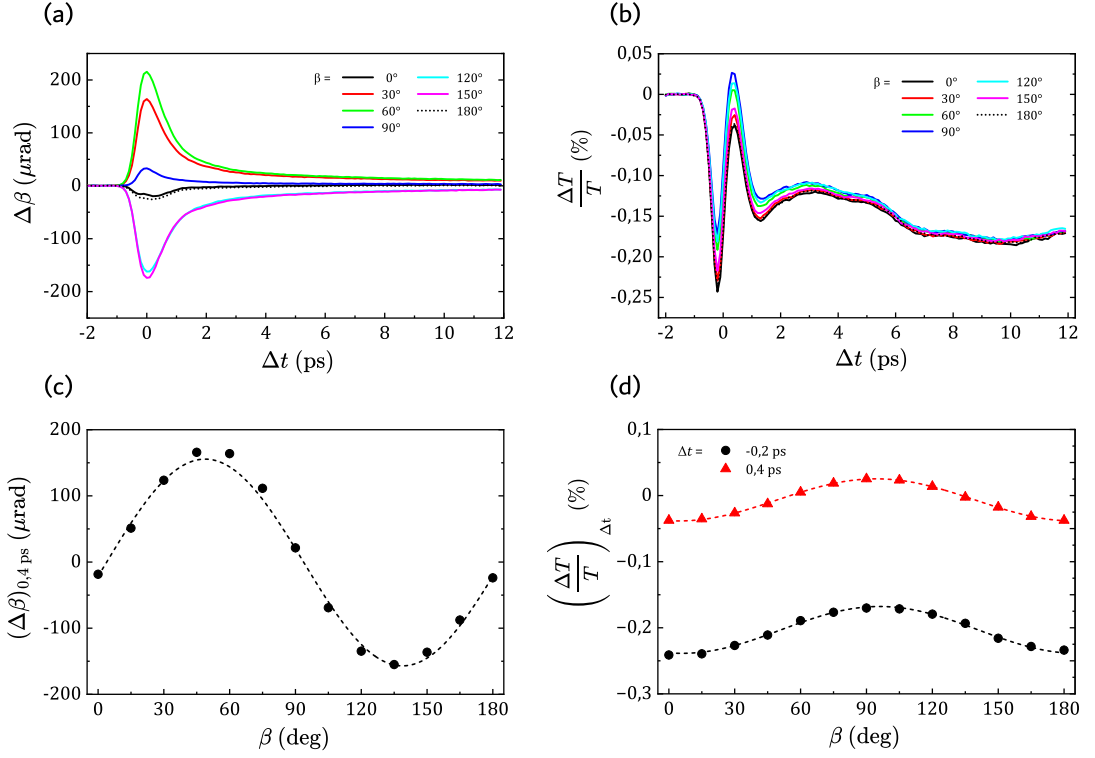
Při teplotě 25 K byla zkoumána také závislost $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$ na sklonu β polarizační roviny sondovacího svazku. Měření proběhla pro β v intervalu 0 až 180° s krokem 15° , v grafech na obr. 4.9a a 4.9b jsou zobrazeny naměřené závislosti $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$ s krokem 30° . Hodnoty $\Delta\beta$ v $\Delta t = 0,4$ ps jsou v závislosti na β vyneseny do grafu na obr. 4.9c, kde byly proloženy předpokládanou závislostí (1.1) popisující stočení polarizační roviny v důsledku Voigtova jevu s parametry fitu uvedenými v tab. 4.1a. V naměřeném signálu $\Delta T/T(\Delta t)$ se závislost na β projevuje pouze v krátkých časech Δt , pro delší časy závislost vymizí (obr. 4.9b). V grafu na obr. 4.9d jsou vyneseny naměřené hodnoty $\Delta T/T$ v $\Delta t = -0,2$ ps



Obr. 4.8: Vliv polarizace excitačního svazku. Při teplotě 25 K. $B = 0$ mT, $\beta = 135^\circ$. Časově rozlišená dynamika $\Delta\beta$ (a) a $\Delta T/T$ (b) pro několik hodnot orientace lineární polarizace excitačního svazku θ včetně levotočivé a pravotočivé kruhové polarizace.

a $\Delta t = 0,4$ ps, které byly proloženy Voigtovou závislostí (1.1) se záměnou $\Delta\beta$ za $\Delta T/T$ s fitovanými parametry uvedenými v tab. 4.1b. Modulace naměřeného signálu $\Delta T/T$ v $\Delta t = -0,2$ ps a $\Delta t = 0,4$ ps se jeví stejná, v případě $t = -0,2$ ps je však přítomno podstatně větší pozadí.

Po stránce magneto-optické odtud plyne, že měřený signál $\Delta\beta(\Delta t)$ odpovídá Voigtovu jevu. Modulace signálu popsatelná pomocí Voigtova jevu byla naměřena i v dynamice $\Delta T/T$. Signály $\Delta\beta$ a $\Delta T/T$ jsou tak v časech $\Delta t = -0,2$ ps a $\Delta t = 0,4$ ps stejného, magnetického, původu.



Obr. 4.9: Vliv polarizace sondovacího svazku. Při teplotě 25 K, $\theta = 0^\circ$, $B = 0$ mT. Časově rozlišená dynamika $\Delta\beta$ (a) a $\Delta T/T$ (b) pro několik sklonů β polarizační roviny sondovacího svazku. Hodnoty $\Delta\beta$ v čase $\Delta t = 0,4$ ps (c) a $\Delta T/T$ v časech $\Delta t = -0,2$ ps a $\Delta t = 0,4$ ps (d) v závislosti na β (body). Čáry odpovídají harmonické závislosti popsané vztahem (1.1).

Tab. 4.1: Fitované parametry měřených signálů pomocí vztahu pro stočení roviny polarizace $\Delta\beta = P \sin(2(\varphi - \beta)) + D$ dané Voigtovým jevem. Nejistoty dány šumem v měřeném signálu a nepřesností fitu.

(a) Signál $\Delta\beta$.				(b) Signál $\Delta T/T$. ($\Delta\beta$ ve Voigtově vztahu nahrazeno $\Delta T/T$.)			
Δt (ps)	P (μrad)	D (μrad)	φ (deg)	Δt (ps)	P (% · 10 ⁻²)	D (% · 10 ⁻²)	φ (deg)
0,4	156 ± 5	-1 ± 3	93,8 ± 0,5	-0,2	3,54 ± 0,09	-20,33 ± 0,07	141,8 ± 0,8
				0,4	3,18 ± 0,03	-0,65 ± 0,02	139,4 ± 0,2

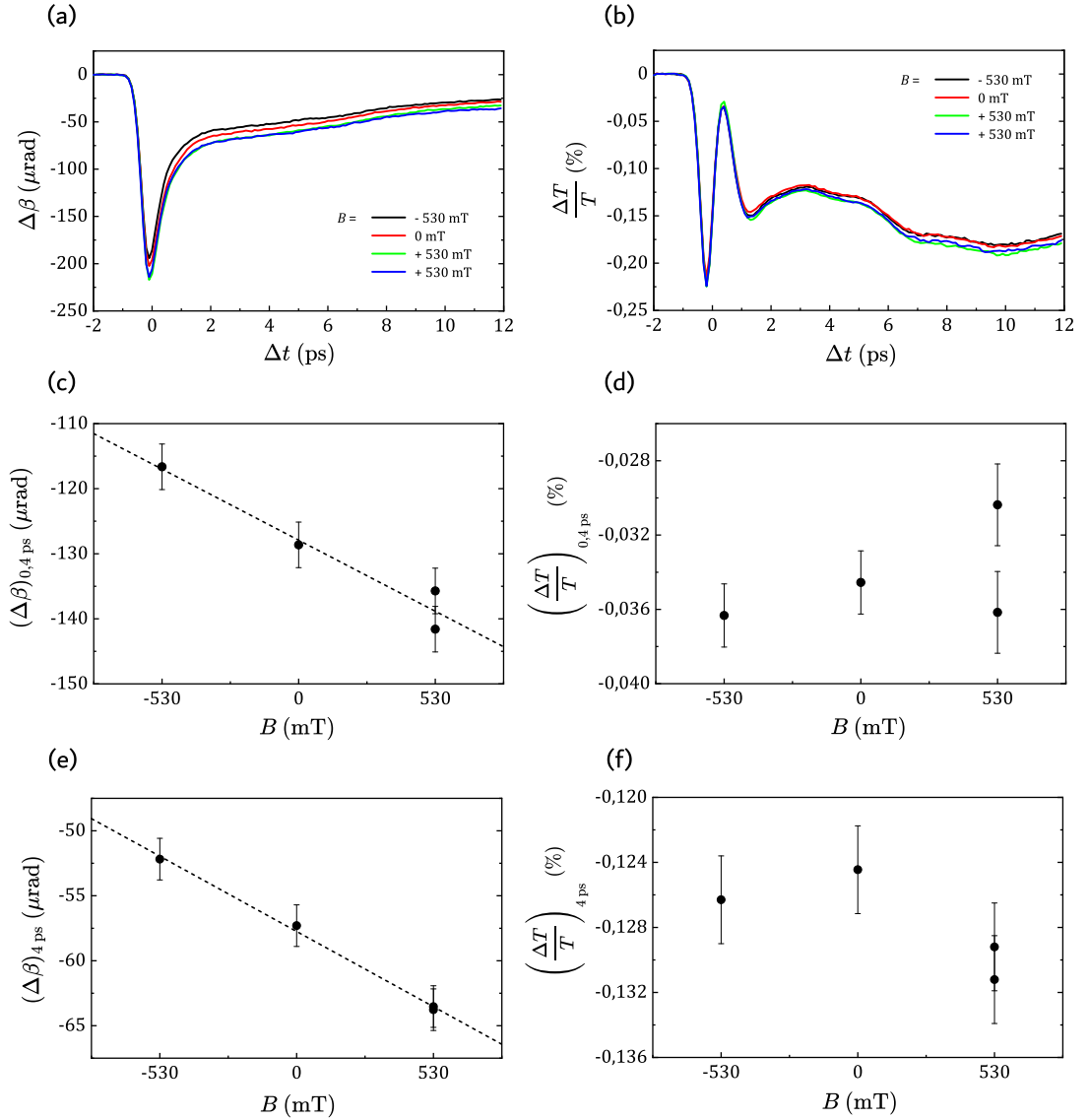
4.2 Nekolmý dopad sondovacího svazku na vzorek

Změnou geometrie experimentu z kolmého dopadu sondovacího svazku na vzorek na dopad nekolmý (pod úhlem 15°) byl studován možný projev dalších magneto-optických jevů.

Při teplotě 25 K byl zkoumán vliv magnetického pole B na signály $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$ (grafy na obr. 4.10a a 4.10b). Pro zjištění reprodukovatelnosti měření byly závislosti pro $B = -530$ mT změřeny dvakrát (na začátku a na konci měření).

Z naměřených závislostí $\Delta\beta(\Delta t)$ a $\Delta T/T(\Delta t)$ byly v závislosti na B odečteny jejich hodnoty v časech $\Delta t = 0,4$ ps a $\Delta t = 4$ ps (grafy na obr. 4.10c-f). Zatímco vynesené hodnoty $\Delta\beta$ v grafech na obr. 4.10c a 4.10e jeví lineární pokles s rostoucím B , což poukazuje na slabou závislost magneto-optického signálu $\Delta\beta$ na magnetickém poli, vynesené hodnoty $\Delta T/T$ v grafech na obr. 4.10d a 4.10f nevykazují na magnetickém poli žádnou systematickou závislost.

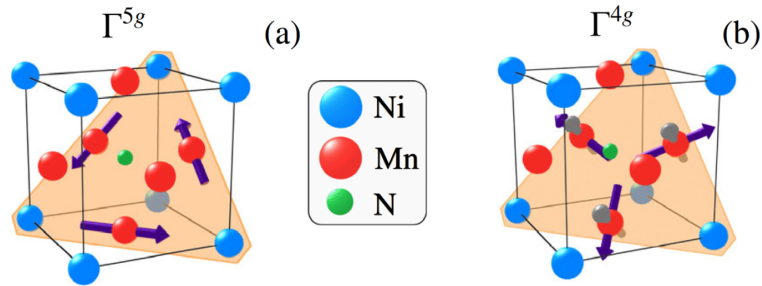
Slabá závislost $\Delta\beta(\Delta t)$ na magnetickém poli je přisuzována období longitudálního MOKE (obr. 1.3d) v reflexní geometrii, který je znám pod označením LMET (lineární magneto-optický efekt v transmisi).



Obr. 4.10: Vliv vnějšího magnetického pole při nekolném dopadu sondovacího svazku na vzorek. Při teplotě 25 K, $\theta = 135^\circ$, $\beta = 135^\circ$. Časově rozlišená dynamika $\Delta\beta$ (a) a $\Delta T/T$ (b) při vnějším magnetickém poli B . Odečtené hodnoty $\Delta\beta$ v časech $\Delta t = 0,4$ ps (c) a $\Delta t = 4$ ps (e) v závislosti na B (body). Čára znázorňuje fit lineární závislosti. Odečtené hodnoty $\Delta T/T$ v čase $\Delta t = 0,4$ ps (d) a $\Delta t = 4$ ps (f) nevykazují žádnou systematickou závislost na B . Chybové úsečky byly odhadnuty z velikosti šumu v měřených signálech.

5. Diskuse výsledků

Jak již bylo uvedeno v Úvodu, hlavním cílem této práce bylo zjistit, jestli dopad femtosekundového laserového pulzu na tenký film připravený z nekolineárního antiferomagnetického kovu Mn_3GaN vyvolá obdobné efekty jako v případě podobného materiálu Mn_3NiN [1]. Oba tyto materiály patří do skupiny antiperovskitů Mn_3AN na bázi manganu, které obecně vykazují celou řadu zajímavých vlastností [18]. Tyto materiály jsou geometricky frustrované antiferomagnety, které se často nacházejí ve dvou nekolineárních magnetických strukturách znázorněných na obr. 5.1. V případě tenkých filmů připravovaných z těchto materiálů jsou jejich vlastnosti také silně ovlivňované substrátem použitým při jejich depozici, což je způsobeno mechanickým pnutím vlivem odlišných mřížkových konstant depovaného materiálu a substrátu. Námi studované vzorky jsou připravované na substrátu MgO , kde v případě Mn_3NiN je magnetická struktura typu Γ^{4g} (kde spiny směřují „dovnitř“ nebo „ven“ z trojúhelníků umístěných podél tělesových uhlopříček krychle), zatímco v případě Mn_3GaN je typu Γ^{5g} (kde spiny směřují „podél hran“ trojúhelníků) [1].



Obr. 5.1: Nekolineární magnetické struktury vyskytující se často v antiperovskitech Mn_3AN . (a) Γ^{5g} , (b) Γ^{4g} . [18] Znázorněné struktury představují Mn_3NiN , v případě Mn_3GaN je atom niklu nahrazen atomem galia.

Dříve provedené experimenty ve filmech Mn_3NiN na substrátu MgO ukázaly, že pokud na studovaný antiferomagnet dopadne lineárně polarizovaný excitační laserový puls, sondační pulsy detekují magneto-optický (MO) signál, jehož velikost závisí harmonicky na orientaci lineární polarizace excitačních pulzů [1]. Provedené teoretické výpočty a modelování následně ukázaly, že tento efekt je důsledek ultrakrátkých krutů (*torques*) na jednotlivé spiny manganů, které jejich vlivem na časové škále jednotek pikosekund mění svůj směr v rovině trojúhelníků. Mikroskopicky jsou tyto kruty důsledkem krátkého pulsu spinově-polarizovaných elektronů, který je vyvolán anizotropní absorpcí excitačního laserového pulsu jednotlivými mangany [1]. Výsledky naměřené v této bakalářské práci ukazují, že naprosto stejný efekt je pozorován také pro vzorky Mn_3GaN na MgO (obr. 4.6a). Z toho vyplývá, že existence těchto ultrarychlých krutů není omezena jen na jednu konkrétní spinovou konfiguraci (obr. 5.1) a je přítomna v širší skupině materiálů než jen v Mn_3NiN . Nezávislost tohoto jevu na přesné spinové konfiguraci je dále podporována tím, že v Mn_3GaN je pozorován jak při teplotě 100 K (obr. 4.6a), tak i při 25 K (obr. 4.8a), kde je magnetické uspořádání alespoň částečně jiné (viz magnetická charakterizace studovaného vzorku na obr. 3.3). Zajímavé také je, že

(stejně jako v Mn_3NiN) pozorované doznívání MO signálu na pikosekundové časové škále je mnohem rychlejší než doznívání přechodné propustnosti (obr. 4.3), která je vyvolána ve vzorku dopadem excitačního laserového pulsu a která odráží dynamiku odvodu tepla z tenkých filmů na (sub)nanosekundové časové škále [10]. Nejpravděpodobnějším vysvětlením je, že tato extrémně rychlá spinová dynamika souvisí se silnou výměnnou interakcí mezi jednotlivými spiny, která je velice rychle stabilizuje opět v původní rovnovážné poloze. To ukazuje, že pozorovaný netermální mechanismus změny spinové konfigurace v antiperovskitech Mn_3AN by mohl být velice zajímavý pro případnou realizaci ultrarychlých pamětí. V tomto kontextu je důležité, že v Mn_3GaN (na rozdíl od Mn_3NiN) tento efekt pozorujeme i za pokojové teploty (obr. 4.7a a 4.7c). Navíc při většině studovaných teplot tento „na orientaci polarizace excitačního laserového pulsu“ závislý MO signál značně dominuje nad „polarizačně nezávislým“ MO signálem (obr. 4.7c a 4.7e). Každopádně před případnou snahou o realizaci magnetické paměti z tohoto materiálu je potřeba nejdříve zjistit, jestli příslušný mechanismus vůbec může vést k přepínání spinové konfigurace manganů mezi jednotlivými doménami, které leží podél jednotlivých tělesových uhlopříček krychle.

Při kolmém dopadu sondovacího svazku na vzorek je (stejně jako v Mn_3NiN) pozorovaný MO signál nezávislý na přiloženém vnějším magnetickém poli (obr. 4.4a), což je velice pravděpodobně způsobeno tím, že v této experimentální konfiguraci detekujeme pouze Voigtův kvadratický MO jev (viz charakteristická harmonická závislost MO signálu na orientaci polarizace sondovacího svazku znázorněná v obr. 4.9c). Pokud má ale sondovací svazek nenulový úhel dopadu na vzorek, začnou se projevovat také MO jevy lineární v magnetických momentech (obr. 1.3), díky čemuž měřený MO signál začne na magnetickém poli záviset. Nicméně jak ukazují obr. 4.10a a 4.10c je tato závislost poměrně hodně slabá, čímž se Mn_3GaN liší od Mn_3NiN , kde příslušný MO signál na magnetickém poli začne záviset velice silně. To je velice pravděpodobně způsobeno odlišnou spinovou konfigurací v těchto dvou materiálech, protože jevy závislé lineárně na magnetických momentech by měly být podstatně silnější pro magnetickou strukturu Γ^{4g} (tj. v Mn_3NiN) než pro Γ^{5g} (v Mn_3GaN).

Dalším podstatným rozdílem mezi výsledky naměřenými v Mn_3GaN a Mn_3NiN je existence „zákmitu“ v přechodné propustnosti, který je pozorovatelný v časech $\approx 0,5 - 1$ ps po dopadu excitačního pulsu. Zatímco pomalu doznívající „záporný“ signál přechodné propustnosti (tj. signál odpovídající přechodnému zvýšení absorpce ve vzorku, viz obr. 4.3b) je ve studované spektrální oblasti naprosto typický pro mnohé kovy [10], pozorovaný ultrakrátký signál s kladným znaménkem přechodné propustnosti (viz např. obr. 4.6b) je značně překvapivý. Nami provedená měření ale jasně ukazují, že tento signál souvisí s magnetickým uspořádáním ve vzorku (obr. 4.7b a 4.7d) a navíc závisí na volbě orientace lineární polarizace sondovacího svazku (obr. 4.9b a 4.9d). Původ tohoto signálu zatím není jasný a bude proto předmětem našich experimentů a teoretického studia v blízké budoucnosti.

Závěr

V bakalářské práci jsme se věnovali studiu tenké vrstvy nekolineárního antiferomagnetu Mn_3GaN pomocí metody excitace a sondování v transmisní geometrii. Zjistili jsme, že po dopadu laserového pulsu na vzorek dojde ke vzniku magneto-optického signálu, jehož velikost závisí silně na orientaci lineární polarizace excitačních pulzů, což interpretujeme jako důsledek působení ultrakrátkých krutů na jednotlivé spiny vlivem anizotropní absorpce excitačního laserového pulsu jednotlivými mangany. Nejdůležitým zjištěním této práce je, že tento efekt existuje nejen v Mn_3NiN , kde byl v naší laboratoři poprvé před časem pozorován, ale také v Mn_3GaN , který má odlišnou konfiguraci rovnovážného spinového uspořádání. To ukazuje, že tento netermální jev je přítomný pro různé spinové konfigurace, a má tedy univerzálnější charakter. Ve studovaném Mn_3GaN je tento efekt patrný i při pokojové teplotě, což je spolu s velice rychlou (pikosekundovou) dynamikou návratu do rovnovážné spinové konfigurace velice zajímavé z hlediska potenciálního vývoje ultrarychlých magnetických pamětí. Zajímavé chování v tomto materiálu vykazuje také dynamika přechodné transmise, kde jsme ≈ 1 ps po dopadu excitačního pulsu pozorovali velice rychlý signál, který také souvisí s magnetickým uspořádáním ve vzorku. Původ tohoto signálu ale zatím není jasný, a proto bude předmětem našeho studia v budoucnosti.

Seznam použité literatury

- [1] Kimák, J., Johnson, F., Zemen, J., Carva, K., Železný, J., Schmoranzarová, E., Ostatnický, T., Boldrin, D., Cohen, L. F. & Němec, P. Článek připravován k publikaci (2024).
- [2] Chappert, C., Fert, A. & Van Dau, F. The emergence of spin electronics in data storage. *Nature Mater* **6**, 813–823 (2007). DOI: 10.1038/nmat2024
- [3] Jungwirth, T., Marti, X., Wadley, P. & Wunderlich, J. Antiferromagnetic spintronics. *Nature Nanotech* **11**, 231–241 (2016). DOI: 10.1038/nnano.2016.18
- [4] Sheldon, R. & Brown, R. MRAM (magnetoresistive random access memory). *TechTarget*, (2021). URL: <https://www.techtarget.com/searchstorage/definition/MRAM>. [cit. 2024-04-23].
- [5] Shepard, J. How to Use MRAM to Improve Reliability, Lower Latencies, and Reduce Power for Edge Computing. *DigiKey*, (2020). URL: <https://www.digikey.cz/en/articles/how-to-use-mram-to-improve-edge-computing>. [cit. 2024-04-23]
- [6] Němec, P., Fiebig, M., Kampfrath, T. & Kimel A. V. Antiferromagnetic opto-spintronics. *Nature Phys* **14**, 229–241 (2018). DOI: 10.1038/s41567-018-0051-x
- [7] Seidl, V. Ultrarychlá laserová spektroskopie antiferomagnetů. Disertační práce. MFF UK, Praha, (2018).
- [8] Hamrle, J. Magneto-optical Kerr effect (MOKE). (2014). URL: http://alma.karlov.mff.cuni.cz/hamrle/teaching/lectures/hamrle_moke.pdf
- [9] Higo, T., Man, H., Gopman, D.B. et al. Large magneto-optical Kerr effect and imaging of magnetic octupole domains in an antiferromagnetic metal. *Nature Photon* **12**, 73–78 (2018). DOI: 10.1038/s41566-017-0086-z
- [10] Surýnek, M., Saidl, V., Kašpar, Z., Novák, V., Campion, R. P., Wadley, P. & Němec, P. Investigation of magnetic anisotropy and heat dissipation in thin films of compensated antiferromagnet CuMnAs by pump–probe experiment *J. Appl. Phys.* **127**, 233904 (2020). DOI: 10.1063/5.0006185
- [11] Saidl, V., Němec, P., Wadley, P. et al. Optical determination of the Néel vector in a CuMnAs thin-film antiferromagnet. *Nature Photon* **11**, 91–96 (2017). DOI 10.1038/nphoton.2016.255
- [12] Hongyu Chen, Peixin Qin, Han Yan, Zexin Feng et al. Noncollinear Antiferromagnetic Spintronics. *Materials Lab* 2022, **1**, 220032. DOI: 10.54227/mlab.20220032

- [13] Zhao, H.C., Xia, H., Hu, S. et al. Large ultrafast-modulated Voigt effect in noncollinear antiferromagnet Mn_3Sn . *Nat Commun* **12**, 5266 (2021). DOI: 10.1038/s41467-021-25654-9
- [14] Boldrin, D., Mihai, A., Zou, B. et al. Giant Piezomagnetism in Mn_3NiN . *ACS Applied Materials & Interfaces*, **10**, 18863-18868 (2018). DOI: 10.1021/acsami.8b03112
- [15] Rozkotová, E. Dynamika spinově polarizovaných nosičů náboje v polovodičích. Diplomová práce. MFF UK, Praha, (2007).
- [16] Nan, T., Quintela, C.X., Irwin, J. et al. Controlling spin current polarization through non-collinear antiferromagnetism. *Nat Commun* **11**, 4671 (2020). DOI: 10.1038/s41467-020-17999-4
- [17] Veis, M., nepublikováno.
- [18] Boldrin, D., Mendive-Tapia, E., Zemen, J. et al. Multisite Exchange-Enhanced Barocaloric Response in Mn_3NiN . *Phys. Rev. X* **8**, 041035 (2018)

Seznam obrázků

1.1	Schematické znázornění principu GMR	4
1.2	Schematické znázornění principu STT	5
1.3	Geometrie magneto-optických jevů	7
1.4	Schematické znázornění Voigtova jevu a metody excitace a sondování	7
1.5	Srovnání možného uspořádání spinových podmřížek feromagnetu a kolineárního a nekolineárního antiferomagnetu	8
2.1	Schéma metody excitace a sondování v transmisní geometrii	9
3.1	Magnetická struktura Mn_3GaN	12
3.2	Transmisní spektra vzorků Mn_3GaN	12
3.3	Magnetická charakterizace pomocí VSM magnetometrie	13
4.1	Hledání optimálního výkonu excitačního svazku	15
4.2	Vliv fokusace excitačního svazku na měřené signály	16
4.3	Delší časová škála	16
4.4	Vliv vnějšího magnetického pole (kolmý dopad)	17
4.5	Elipticita a rotace	17
4.6	Vliv polarizace excitačního svazku (při teplotě 100 K)	18
4.7	Teplotní závislost	19
4.8	Vliv polarizace excitačního svazku (při teplotě 25 K)	20
4.9	Vliv polarizace sondovacího svazku	21
4.10	Vliv vnějšího magnetického pole (nekolmý dopad)	23
5.1	Nekolineární magnetické struktury Γ^{5g} a Γ^{4g}	24