ISSN (Print) 1598-5385
ISSN (Online) 2233-6648
≪연구논문≫ Journal of the Korean Magnetics Society 31(5), 229-235 (2021) https://doi.org/10.4283/JKMS.2021.31.5.229

Instrumentation of Ultrafast Sagnac Interferometry for Simultaneous Detection of Lattice and Spin Dynamics

Jiwan Kim*
Department of Physics, Kunsan National University, Kunsan 54150, Korea

(Received 14 October 2021, Received in final form 18 October 2021, Accepted 20 October 2021)

We built ultrafast Sagnac interferometer to simultaneously measure the lattice and the spin dynamics. Although the pump-probe magneto-optical Kerr effect (MOKE) instrument is most widely used in Femtomagnetism to measure reflectivity and Kerr responses, it is considerably hard to analyze fundamental interactions of electron-spin or lattice-spin due to the complex nature of the reflectivity. The ultrafast Sagnac interferometer has the great advantage of obtaining the real and imaginary parts of MOKE as well as the reflectivity and the lattice displacement at the same time. Therefore, through the rigorous investigation of temporal sequences of electron, lattice, and spin systems, we expect this instrument to play an leading role in unraveling interaction mechanisms between systems.

Keywords : ultrafast dynamics, Sagnac interferometer, time-resolved pump-probe technique

초고속 격자, 스핀 동역학 신호의 동시 측정을 위한 사냑 간섭계 제작

김지완*
군산국립대학교 물리학과, 전북 군산시 미룡동 558, 54150

(2021년 10월 14일 받음, 2021년 10월 18일 최종수정본 받음, 2021년 10월 20일 게재확정)

기존의 사냑 간섭계를 수정하여 초고속 시간 영역에서 격자 및 스핀 동역학을 동시에 측정할 수 있는 초고속 사냑 간섭계를 제작하였다. 현재 펨토초 자성분야에서 널리 사용되고 있는 초고속 펌프-프로브 자기광 장비는 반사율과 스핀 동역학 측정이 가능하나 반사율에서 전자와 격자의 신호를 분리할 수 없어 상호작용을 이해하기 어려웠다. 초고속 사냑 간섭계는 전자의 동역학을 제외한 격자 동역학 뿐 아니라, 커 신호의 실수부와 허수부까지 한번에 측정할 수 있으므로, 전자, 격자 및 스핀 동역학 각 신호의 시간 순서를 측정함으로써 시스템 간의 상호작용 메커니즘을 결정할 수 있는 아주 중요한 정보를 제공할 것이라 기대한다.

주제어 : 초고속 동역학, 사냑 간섭계, 시간분해능 펌프-프로브

I. 서 론

90년대 중반부터 펨토초 레이저 기반의 펌프-프로브 기술이 자성 시료나 비자성 금속 시료에 적용되어 비 열평형 시간 영역에서의 동역학에 관심이 집중되게 되었다[1,2]. 이는 기존에 알고 있었던 물질내에 존재하는 전자(electron), 격자(lattice), 스핀(spin) 시스템 사이의 온도가 약 1 ps 이내에서는 동일하지 않다는 결과들을 측정하게 되었으며, 이를 해석하기 위해서 3개의 시스템 간의 열 교환 방정식인 3-온도 모델(three-temperatures model)을 사용하여 간접적으로 추정하고 있다[3]. 스핀 동역학은 일반적으로 자기광 커 효과(magneto-optical Kerr effect)를 이용하여 측정하고 전자와 격자는 반사율을 측정하여 3-온도 모델로부터 추정된 전자와 격자의 온도를 사용하여 두 시스템의 신호를 분리한다. 그러나 3-온도 모델에서 사용되는 열교환 동역학 파라미터 값들이 대부분의 경우 알려져 있지 않아 반사율 신호로 추정하기에는 많은 임의적인 요소가 내재되어 있으며, 이는 전자와 격자가 펨토초 펄스에 의해 얼마나 빨리 반응하는지, 또는 스핀을 포함한 시스템과의 상호작용은 어느 시간 영역에서 발생하는지 정확하게 측정된 바가 없다. 일반적으로 펨토초 레이저 인가 시, 단위 부피당 열용량이 작은 전자의 온도가 가장

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.
*Corresponding author: Tel: +82-64-469-7534,
e-mail: hwoarang.kim@gmail.com

빨리 상승하고 여기에 저장된 에너지가 각 시스템 사이의 열교환 계수를 통해 격자와 스핀에 전달된다고 해석하고 있다.

그러나 최근에는 전자의 반응 속도만큼 격자-스핀 상호작용 시간 영역이 빠르다는 연구 결과가 게재됨에 따라[4], 격자 및 스핀 신호를 전자 신호로부터 독립적으로 측정하는 연구에 관심이 집중되고 있는데, 초고속 X-선 회절(UXRD: ultrafast X-ray diffraction)을 사용하여 격자 동역학을 측정하고 X-선 자기 원형편광 이색성(XMCD: X-ray magnetic circular dichroism)을 이용하여 스핀 동역학 정보와의 비교를 함으로써 새로운 현상들을 보고하고 있다[5]. 이는 앞에서 언급한 전자와 격자의 정보가 복잡하게 얽혀 있는 반사율 정보 대신 오로지 격자의 동역학만 측정함으로써 스핀의 탈자 현상이 격자의 수축현상의 원인임을 밝히기도 하였다[6]. 그러나 UXRD와 XMCD 실험은 동시에 수행되는 것이 아니므로 시간 0점을 맞추기 위해서는 기준 신호가 필요하는 등 많은 주의를 요해야 한다.

이러한 문제점을 극복하기 위해, 본 그룹에서는 자기광 현상과 반사율, 격자의 운동 모두를 동시에 측정할 수 있는 초고속 사냑 간섭계 장비를 개발하였다. 이는 알려진 사냑 간섭계를 초고속 펌프-프로브 실험에 맞게 수정한 장비로 90년대 후반 구축된 바가 있으나[7] 스핀의 정보는 측정된 바가 없었다. 이 논문에서는 간단한 존스 행렬(Jones matrix) 계산을 통해 자기광 현상을 측정할 수 있도록 구축한 초고속 사냑 간섭계를 소개하고자 한다. 이를 통해 대단위 장비가 아닌 실험실 수준의 간단한 펨토초 오실레이터 레이저를 이용하여 각 시스템의 상호작용 시간 영역을 더 정확히 측정하고 그에 따른 메커니즘을 밝히는 것이 가능할 것으로 기대하고 있다.

II. 실험 방법

1. 장비 설계

본 실험실에서 제작된 초고속 사냑 간섭계는 Fig. 1(a)에 나타나 있다. 이는 Oliver Wright 그룹의 논문[7]을 기반으로

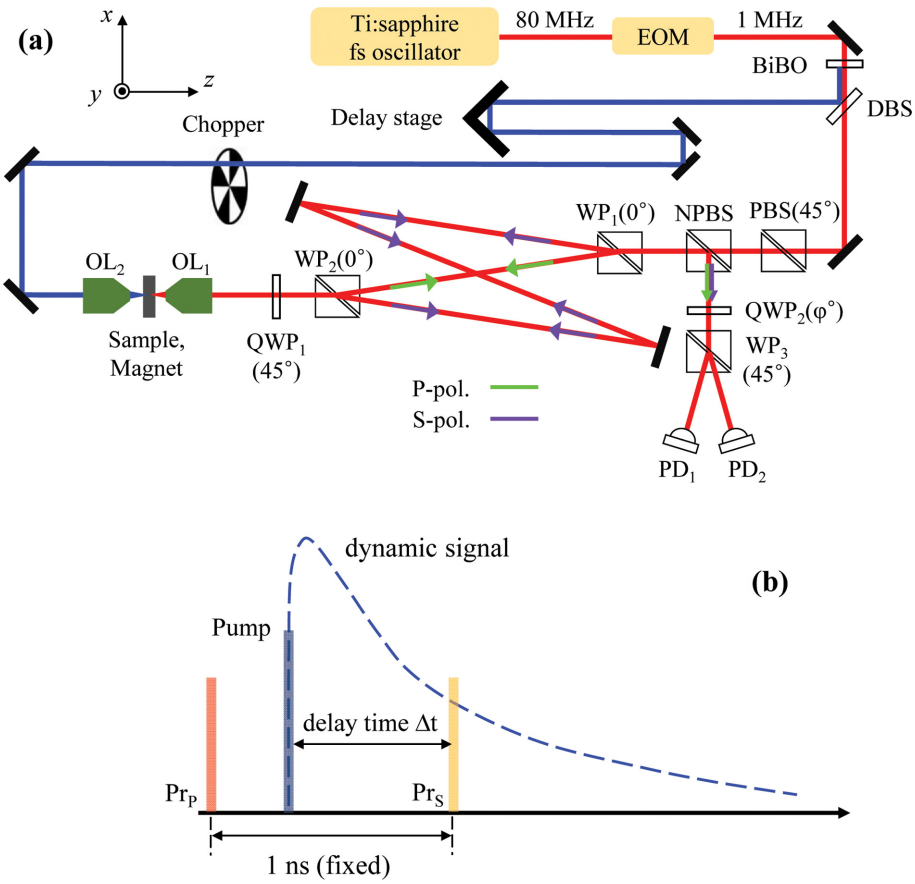

Fig. 1. (Color online) (a) Schematic picture of the ultrafast Sagnac interferometry setup. DBS: dichroic beam splitter, PBS: polarizing beam splitter, NPBS: non-polarizing beam splitter, WP: Wollaston prism, QWP: quarter-wave plate, OL: objective lens, PD: photodetector. (b) Schematic picture for ultrafast Sagnac pump-probe technique. The p-polarized beam arrives before the pump pulse. The s-polarized beam after the pump pulse senses dynamic information of a magnetic material. The time interval between two polarized beams is fixed to 1 ns.

했으며, 신호의 분해능 및 측정의 정밀도를 향상시키기 위해 90° 반사의 편광 빔 스플리터 기반의 직사각구조의 사냑 루프 대신 월라스톤 프리즘(Wollaston prism)을 사용한 Z 형태의 루프로 수정하였다. 이 장비는 티타늄 사파이어 크리스탈을 사용한 반복률 80 MHz, 파장 800 nm, 펄스폭 40 fs, 펄스 당 7 nJ 에너지를 갖는 펨토초 오실레이터 레이저로 동작하며 전 펄스에 의한 열에너지 축적을 피하기 위해 전기광학 변조기(electro-optic modulator)를 거쳐 1 MHz의 반복률로 낮춰 사용하고 있다. 변조기를 통과하게 되면 분산으로 인하여 40 fs의 펄스폭이 수 ps로 길어지기 때문에 음의 분산을 갖는 두개의 미러를 6번 반사시켜 최종 약 50 fs의 펄스폭을 갖도록 최적화 하였다. 또한 펌프 펄스와 프로브 펄스를 이색성으로 구성하기 위하여 펌프 펄스는 500 μm의 두께를 갖는 BiB_3O_6(BiBO) 크리스탈을 통과시켜 65 fs의 펄스폭을 갖는 400 nm 파장을 25%의 효율로 생성시키고 펌프 펄스는 시료의 뒷면으로 인가하고 프로브는 앞면을 측정하는 방식을 채택하였다. 펌프와 프로브를 모두 시료의 앞면으로 인가할 경우 이색성 빔 스플리터를 사용해야 하는데, 해결 불가능한 광학기기의 결함에 의해 신호의 분해능 및 정밀도가 낮아지는 문제가 있었기 때문이다. 또한 측정 신호의 균일성을 위해 시료 위치에서 집속된 펌프 빔의 직경이 더 커야하므로 펌프 빔 집속에는 개구수(N.A.: numerical aperture) = 0.4, 프로브 빔 집속에는 N.A. = 0.55 인 대물렌즈를 각각 사용하였다. 그림에 표시한 각 광학기기 약어는 캡션에 간략하게 설명되어 있다.

프로브 빔이 첫 번째 편광 빔 스플리터(PBS: polarizing beam splitter)를 통과하여 45° 선편광으로 변하게 되고, 50:50 비편광 빔 스플리터(NPBS: non-polarizing beam splitter)에서 세기가 반으로 줄어 월라스톤 프리즘(WP: Wollaston prism) 1로 입사하게 된다. 45° 선편광은 p 편광(녹색 화살표)과 s 편광(노랑 화살표)으로 분리되고 월라스톤 프리즘 2에 도달하기까지 각 빔의 광학적 거리가 달라지게 된다. 두 개의 빔은 $\lambda/4$ 파장기(QWP: quarter wave plate)를 지나 각각 우원편광, 좌원편광으로 변하게 되고, Fig. 1(b)에서 나타낸 바와 같이, 광학적 거리가 짧은 p 편광 빔이 펌프 펄스보다 먼저 도달하게 되어 시료의 본래 상태를 측정하고 1 ns 이후에 도달하게 되는 s 편광 빔은 펌프 펄스 이후에 도달하게 되어 변한 시료의 상태, 혹은 동역학을 측정하게 된다. 시료에서 반사되어 나온 프로브는 $\lambda/4$ 파장기를 한번 더 거쳐 결국 p 편광은 s 편광으로 s 편광은 p 편광으로 전환되어 하나의 닫힌 루프를 경험한다. 최종적으로 월라스톤 프리즘 1까지 회귀하는 두 편광 빔은 같은 광학적 거리를 거치게 되어 간섭 패턴을 보이게 된다. 이를 두 개의 균형 광 검출기(balanced photodetector)로 검출, 락인 증폭기(Lock-in amplifier)로 측정하여 격자의 움직임(lattice displacement), 반사율(reflectivity), 그리고 시료에 자기장을 인가했을 경우 측정되는 자기광 커(magneto-optical Kerr) 동역학 신호로 분석하게 된다[8].

2. 존스 행렬 계산: 정적 신호

간단한 존스 행렬 계산으로 이 장비에서 어떤 신호를 얻을 수 있는지 쉽게 이해할 수 있다. Fig. 1(a)와 같이 배치된 광학기기에 해당하는 존스 행렬은 다음으로 기술할 수 있으며, 아래 첨자 P: p 편광, S: s 편광, R: 반사, T: 투과를 의미한다.

$\mathrm{E}_P = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$, $\mathrm{E}_S = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$, $\mathrm{NPBS}_R = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$, $\mathrm{NPBS}_T = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$, $\mathrm{WPBS}_P = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$, $\mathrm{WPBS}_S = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$, $\mathrm{QWP} = e^{i\pi/4}\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -i \end{pmatrix}$. 또한 광학기기를 광축을 중심으로 각도 θ 만큼 회전시키기 위한 회전 행렬 $\mathrm{R} = \begin{pmatrix} \cos\theta & -\sin\theta \\ \sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix}$, 자성 시료 행렬 $\mathrm{S} = r\begin{pmatrix} -1 & \theta_K + i\varepsilon_K \\ \theta_K + i\varepsilon_K & 1 \end{pmatrix}$을 사용하였다. 여기에서 r은 복소 반사 계수(complex reflection coefficient), θ_K는 커 회전(Kerr rotation), ε_K는 커 타원율(Kerr ellipticity)을 의미하며, θ_F는 시료의 자성과 관계없이 자기장 하의 대물렌즈에서 발생하는 패러데이 회전(Faraday rotation) 각을 나타낸다. 각 편광 빔이 비편광 빔 스플리터에서 입사하여 회귀하는 경로를 생각할 때 각 편광의 상태는 다음으로 기술된다.

$$\mathrm{Pr}_P = \mathrm{NPBS}_R \cdot \mathrm{WP}_S \cdot \mathrm{R}(3\pi/4) \cdot \mathrm{QWP} \cdot \mathrm{R}(-3\pi/4) \cdot \mathrm{R}(-\theta_F) \cdot \mathrm{S} \cdot \mathrm{R}(\theta_F) \cdot \mathrm{R}(\pi/4) \cdot \mathrm{QWP} \cdot \mathrm{R}(-\pi/4) \cdot \mathrm{WP}_P \cdot \mathrm{NPBS}_T \cdot \mathrm{E}_P, \quad (1)$$

$$\mathrm{Pr}_S = \mathrm{NPBS}_R \cdot \mathrm{WP}_P \cdot \mathrm{R}(3\pi/4) \cdot \mathrm{QWP} \cdot \mathrm{R}(-3\pi/4) \cdot \mathrm{R}(-\theta_F) \cdot \mathrm{S} \cdot \mathrm{R}(\theta_F) \cdot \mathrm{R}(\pi/4) \cdot \mathrm{QWP} \cdot \mathrm{R}(-\pi/4) \cdot \mathrm{WP}_S \cdot \mathrm{NPBS}_T \cdot \mathrm{E}_S. \quad (2)$$

광학적 경로 길이가 같은 두 빔은 합쳐져 간섭하므로 두번째 $\lambda/4$ 파장기의 회전각을 φ라 할 때, 45°로 회전된 월라스톤 프리즘 3을 통과하여 균형 광 검출기 1, 2로 측정되는 신호는 각각 다음과 같이 계산된다.

$$I_{1+H} = \left|\mathrm{R}(\pi/4) \cdot \mathrm{WP}_P \cdot \mathrm{R}(-\pi/4) \cdot \mathrm{R}(\varphi) \cdot \mathrm{QWP} \cdot \mathrm{R}(-\varphi) \cdot (\mathrm{Pr}_P + \mathrm{Pr}_S)\right|^2 \approx \frac{r^2}{8}(3 - \cos 4\varphi - 4(\theta_K + 2\theta_F)\cos 2\varphi + 2\varepsilon_K \sin 4\varphi), \quad (3)$$

$$I_{2+H} = \left|\mathrm{R}(\pi/4) \cdot \mathrm{WP}_S \cdot \mathrm{R}(-\pi/4) \cdot \mathrm{R}(\varphi) \cdot \mathrm{QWP} \cdot \mathrm{R}(-\varphi) \cdot (\mathrm{Pr}_P + \mathrm{Pr}_S)\right|^2 \approx \frac{r^2}{8}(1 + \cos 4\varphi + 4(\theta_K + 2\theta_F)\cos 2\varphi + 2\varepsilon_K \sin 4\varphi). \quad (4)$$

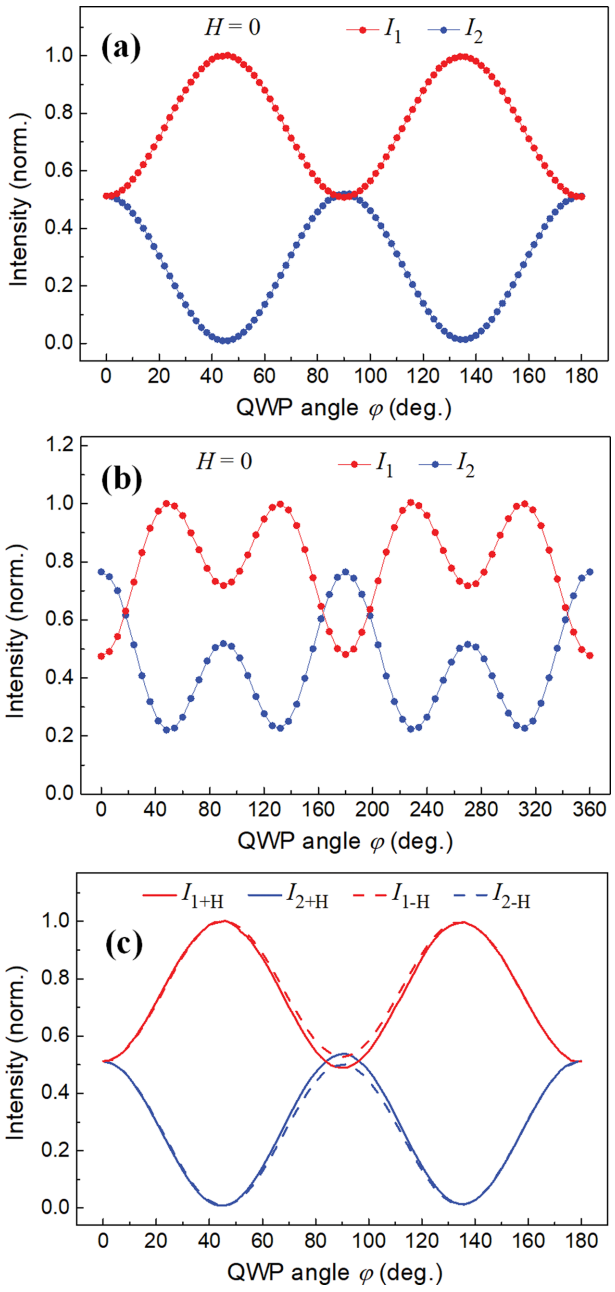

Fig. 2. (a) (Color online) Interferometric signals of two photodiodes at $H = 0$ for a case of a good optical alignment. (b) Interferometric signals of two photodiodes at $H = 0$ for a case of a optical misalignment. (c) Interferometric signals of two photodiodes under $H_z = \pm 2.5$ kG. The magneto-optical response deforms the fourfold (90°) to the twofold (180°) symmetry. The polycrystalline Ni(20 nm) deposited on a sapphire was used for these tests.

참고로 이 신호를 바탕으로 초고속 사냑 간섭계 장비의 완성도 정도를 판단할 수 있는데, 외부자기장이 없는 경우는 $I_1 = r^2(3 - \cos 4\varphi)8$, $I_2 = r^2(1 + \cos 4\varphi)/8$으로 나타나며, 두번째 $\lambda/4$ 파장기를 회전시키면 간단하게 Fig. 2(a)와 같이 90° 주기를 갖는 대칭적인 신호가 측정되게 된다. 그러나 정렬상의 문제로 두 빔이 간섭할 때 공간적으로 완벽하게 겹쳐지지 않거나, 미러나 렌즈, 편광 빔 스플리터 등의 광학기기의 결함 및 산란(scattering)에 의해서 편광이 깨지거나 회전하는 문제들이 발생할 경우 Fig. 2(b)와 같이 90° 주기에서 멀어지는 것과 동시에 오프셋(offset)이 증가하는데, 이것은 결론적으로 두 빔의 간섭정도가 약해지는 것을 의미한다. 대칭성을 확보하는 것이 이 실험의 전제 조건이라 할 수 있다.

외부자기장이 인가되었을 경우는 θ_K, ε_K, θ_F의 값이 모두 살아남으며, 이는 시료의 편광에 따른 선택적 흡수 및 편광 회전에 기인하기 때문에 마치 앞서 언급한 정렬상의 문제 혹은 광학기기의 결함에 의해 발생하는 것과 같은 180° 주기 현상이 발생하게 된다. $H_z = 2.5$ kG 세기의 자기장을 다결정 Ni(20 nm)/sapphire 시료에 수직으로 인가하여(H_{+z}: +z 방향, H_{-z}: –z 방향) 측정한 신호를 Fig. 2(c)에 나타내었다. 분석을 위해 각 검출기에서 측정된 신호에서 자성(I_M)과 비자성(I_{NM}) 정보를 다음과 같이 분리할 수 있다.

$$I_{1M} = (I_{1+H} - I_{1-H})/2 \tag{5}$$
$$= -\frac{r^2}{4}(2\theta_{tot}\cos 2(\varphi - \varphi_0) + \varepsilon_K \cos 4(\varphi - \varphi_0))$$
$$\Rightarrow C_1(2\theta_{tot}\cos 2(\varphi - \varphi_0) + \varepsilon_K \cos 4(\varphi - \varphi_0)) + D_1,$$

$$I_{2M} = (I_{2+H} - I_{2-H})/2 \tag{6}$$
$$= \frac{r^2}{4}(2\theta_{tot}\cos 2(\varphi - \varphi_0) + \varepsilon_K \cos 4(\varphi - \varphi_0))$$
$$\Rightarrow C_2(2\theta_{tot}\cos 2(\varphi - \varphi_0) + \varepsilon_K \cos 4(\varphi - \varphi_0)) + D_2.$$

$$I_{1NM} = (I_{1+H} + I_{1-H})/2 = r^2(3 - \cos 4(\varphi - \varphi_0))/8, \tag{7}$$

$$I_{2NM} = (I_{2+H} + I_{2-H})/2 = r^2(1 + \cos 4(\varphi - \varphi_0))/8. \tag{8}$$

식(5), (6)의 자성신호에서 $\theta_{tot} = \theta_K + 2\theta_F$이며 φ_0는 두번째 $\lambda/4$ 파장기의 정렬 결함에서 나타나는 초기 회전 값이다. φ_0와 ε_K 모두 Fig. 2 그래프의 수평 이동에 영향을 주기 때문에 자성 신호 ε_K를 결정하기 위해서는 φ_0 값을 정확하게 구하는 것이 중요하다. 식(7), (8)을 Fig. 2(a)의 비자성 신호에 피팅함으로써 비교적 쉽게 구할 수 있다.

Fig. 3(a)에 Ni 박막 시료의 H_{+z}와 H_{-z}에서 측정된 각 검출기 신호의 차를 나타내었는데(원형 기호), 식(7), (8)에서 얻은 φ_0를 사용하고 식(5), (6)을 커브 피팅하면(굵은 실선) 파라미터 C_1, C_2, D_1, D_2, θ_{tot}, ε_K의 값을 얻을 수 있다. 이를 통해 $\theta_{tot} = -0.56°$, $\varepsilon_K = -0.076°$를 얻었으며, 최종적으로 θ_K를 얻기 위해서 시료와 관계없는 값인 렌즈의 패러데이 회전각 θ_F를 구해야 하므로 다결정 Au(100 nm) 시료를 사용하여 위의 과정을 반복하였다. Fig. 3(b)에 Au 박막의 I_{1M}, I_{2M}에 해당하는 측정데이터를 원형 기호로, 이를 식(5)와 (6)으로 피팅한 그래프를 실선으로 나타내었으며, 이에 따라 $\theta_F = -0.19°$,

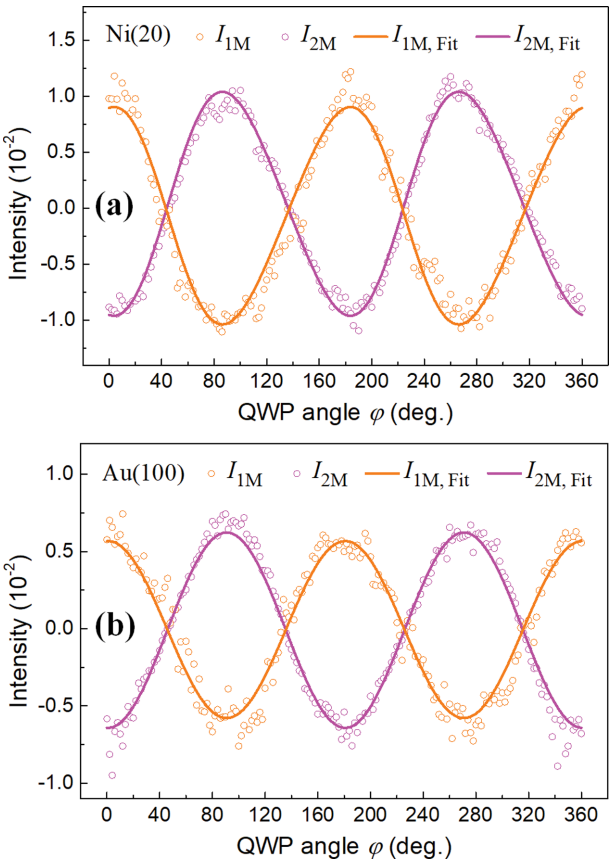

Fig. 3. (Color online) Magnetic signals data of (a) Ni(20 nm) film and (b) Au(100 nm) films (I_{1M}: orange circles, I_{2M}: magenta circles) and corresponding equation fit curves ($I_{1M, Fit}$: orange line, $I_{2M, Fit}$: magenta line) obtained from the difference between respective photodiode signals under H_{+z} and H_{-z}.

$\theta_K = -0.18°$로 결정되었다. 보다 자세한 과정은 논문[8]에 설명되어 있다.

3. 존스 행렬 계산: 동역학 신호

동역학 신호(dynamic signal)는 두번째 $\lambda/4$ 파장기의 각도를 $\varphi = \varphi_0$으로 정렬한 상태에서 펌프 펄스를 인가하여 나타난 시료의 변화된 신호를 의미하며, 자성 및 비자성 신호로 나누어 생각하는 것이 편리하다. 위의 식(5)-(8)에 레이저를 인가하면 식(3), (4)의 두 개의 프로브 빔 중 오직 Pr_S 만이 펌프 이후에 도달하여 변화된 시료의 자성 및 비자성 정보를 측정하기 때문에 펌프에 의해 변화된 신호에 윗첨자 ′를 붙여 다음의 식으로 기술할 수 있다.

$$I'_{1+H} = \left|\mathrm{R}(\pi/4)\cdot \mathrm{WP}_P \cdot \mathrm{R}(-\pi/4)\cdot \mathrm{R}(\varphi)\cdot \mathrm{QWP}\cdot \mathrm{R}(-\varphi)\cdot(\mathrm{Pr}_P + \mathrm{Pr}_S)\right|^2 \tag{9}$$

여기에서 유의할 점은 자성 시료 행렬에서 자성 물리량이 펌프에 의해 변화되었을 때 $\theta'_K = \theta_K + \Delta\theta_K$, $\varepsilon'_K = \varepsilon_K + \Delta\varepsilon_K$으로, 비자성 물리량은 $r' = r + \Delta r = r(1+\rho)e^{i\delta\phi}$으로 기술된다. ρ와 $\delta\phi$는 각각 펌프에 의해 변화된 반사율(reflectance) 및 위상(phase)을 의미한다. 최종적으로 락인 증폭기는 정적 신호가 제거된 펌프 펄스에 의한 변화량만 측정하므로 얻게 되는 신호는 다음과 같다.

$$\Delta I_{1+H} = I'_{1+H} - I_{1+H} \approx \frac{r^2}{4}(\rho + \delta\phi - \Delta\theta_K + \Delta\varepsilon_K), \tag{10}$$

$$\Delta I_{2+H} = I'_{2+H} - I_{2+H} \approx \frac{r^2}{4}(\rho - \delta\phi + \Delta\theta_K + \Delta\varepsilon_K), \tag{11}$$

계산 과정에서 나타나는 θ_K^2, ε_K^2, $\rho\theta_K$, $\rho\varepsilon_K$, $\delta\phi\theta_K$, $\delta\phi\varepsilon_K$의 이차 이상의 항 및 $\theta_K\Delta\theta_K$, $\rho\Delta\theta_K$ 등의 더 작은 기여도를 갖는 항은 삭제하였다. 이를 통해 식(5)-(8)을 펌프에 의해 변화된 양으로 다음과 같이 기술할 수 있다.

$$\Delta I_{1M} = (\Delta I_{1+H} - \Delta I_{1-H})/2 = r^2(-\Delta\theta_K + \Delta\varepsilon_K)/4, \tag{12}$$

$$\Delta I_{2M} = (\Delta I_{2+H} - \Delta I_{2-H})/2 = r^2(-\Delta\theta_K + \Delta\varepsilon_K)/4, \tag{13}$$

$$\Delta I_{1NM} = (\Delta I_{1+H} + \Delta I_{1-H})/2 = r^2(\rho + \delta\phi)/4, \tag{14}$$

$$\Delta I_{2NM} = (\Delta I_{2+H} + \Delta I_{2-H})/2 = r^2(\rho - \delta\phi)/4, \tag{15}$$

따라서 펌프 펄스에 의해 변화된 4개의 신호(ρ, $\delta\phi$, $\Delta\theta_K$, $\Delta\varepsilon_K$)는 독립적으로 다음과 같이 추출된다.

$$\rho = \frac{\Delta I_{1NM} + \Delta I_{2NM}}{I_{1NM} + I_{2NM}}, \tag{16}$$

$$\delta\phi = \frac{\Delta I_{1NM} - \Delta I_{2NM}}{I_{1NM} + I_{2NM}}, \tag{17}$$

$$\Delta\theta_K = -\frac{\Delta I_{1M} - \Delta I_{2M}}{I_{1NM} + I_{2NM}}, \tag{18}$$

$$\Delta\varepsilon_K = \frac{\Delta I_{1M} + \Delta I_{2M}}{I_{1NM} + I_{2NM}}. \tag{19}$$

이 중 $\rho(t) = \Delta R/2R$으로 일반적인 펌프-프로브 실험에서의 측정하는 반사율($\Delta R/R$)의 절반 값을 가지며, 위상 $\delta\phi$는 Fig. 4와 같이 격자 변위(lattice displacement, $u(t)$)와 관계하므로 프로브 파장을 λ_{Pr}이라 할 때 $u(t) = \delta\phi\lambda_{Pr}/4\pi$의 관계가 성립한다. 여기에서는 $u(t)$의 양의 값일 때 격자 수축, 음의 값일 때 격자 팽창으로 정의한다. 이에 더하여 초고속 사냑 간섭계의 또 하나의 강점으로써 커 회전 및 타원율을 추가적인 측정없이 동시에 얻을 수 있으며, 초고속 탈자(ultrafast demagnetization)의 비율($\Delta\theta_K/\theta_K$, $\Delta\varepsilon_K/\varepsilon_K$)을 구하고자 하는 경우 동역학 신호를 앞 절에서 얻은 정적 자성 신호로 나누어 주면 된다.

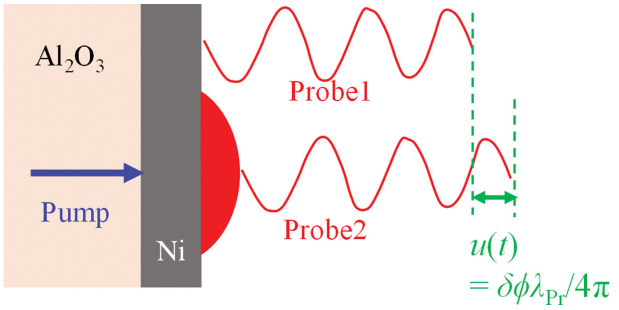

Fig. 4. (Color online) Simple picture for a better understanding of a relation between a lattice displacement $u(t)$ and a phase $\delta\phi$.

III. 실험 결과 및 논의

Fig. 5는 Ni 시료에 펌프 펄스 세기 $I_P = 1.8$ mJ/cm^{2}를 인가했을 때 측정한 동역학 신호를 보여준다. Fig. 5(a)는 비자성 동역학 신호인 격자 변위 $u(t)$(파랑, 왼축)와 반사율 $\rho(t)$(빨강, 오른축)를 나타내며, $u(t)$는 펌프 펄스 에너지를 흡수한 후 약 수백 fs 내에 45 pm의 격자 수축이 일어나고 10 ps에는 15 pm의 격자 팽창이 일어나는 것을 알 수 있다. 3-온도 모델에 따르면 전자, 격자, 스핀의 시스템 중 격자의 열용량이 가장 크기 때문에 격자의 온도 증가는 수 ps의 가장 느린 시간 영역대로 알려져 있으며, Ni의 열 팽창 계수가 13 μ/K 이므로 박막 두께에 균일하게 온도가 분포한다고 할 때 15 pm의 격자 팽창에 해당하는 온도는 약 580 K로 추산할 수 있다. 그러나 0 ps 부근에서의 격자 수축은 쉽게 이해되지 않으며 아직 그 이유에 대해서는 많은 연구가 되지 않았다. 이와 관련한 최근에 발표된 논문에서는 FePt 나노입자(nanoparticle) 열팽창의 경우 시료의 수평방향이 수직방향보다 더 빠르게 비등방 팽창하여 수직 방향으로는 수축이 일어난다고 보고했으나[9], 본 연구와 같이 나노입자가 아닌 연속적인 박막의 경우 수평방향으로 팽창하지 않아 수직 방향으로의 팽창이 필수적이다. 또한 같은 그룹에서 FePt의 초고속 탈자 시 자왜(magnetostriction)현상에 의해 격자가 1 ps 이내에 수축할 수 있음을 주장하였는데[5], Ni의 자왜 값(– 33 μ)은 음수이기 때문에[10] 탈자가 일어날 때 격자 팽창 방향으로 기여하게 되어 설명되지 않는다. 단, 시간 영역을 고려해 보면, 세 시스템 간의 열평형 전 이므로 아직 페르미-디락(Fermi-Dirac) 전자 분포를 만족시키지 못하는 비 열적 전자(nonthermal electrons)들의 영향이 있을 가능성이 있다. 동시에 비 열적 전자 생성 시, 전자는 광자의 에너지를 흡수하여 페르미 에너지 준위보다 높은 에너지 상태로 전이하므로 이 때 오비탈이 변형되어 시료의 두께가 수축할 가능성을 생각할 수 있다. 아직 이에 대해서는 더 많은 데이터 확보가 필요하며 추후 연구할 계획에 있다.

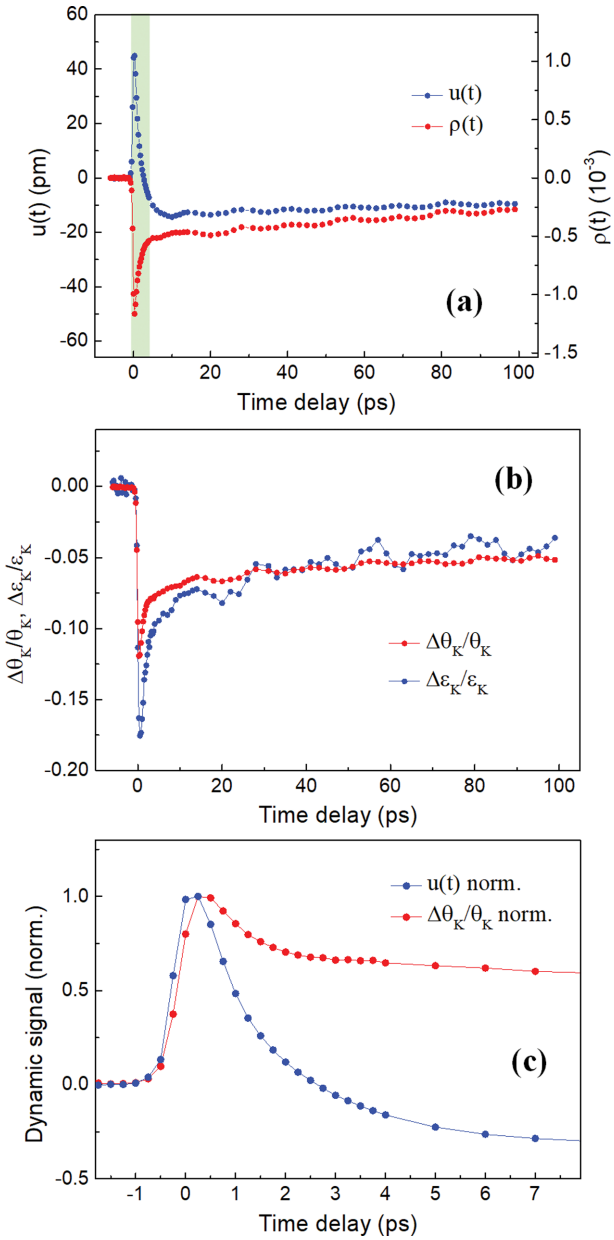

Fig. 5. (Color online) Interferometrically measured dynamic signals induced by pump pulses ($I_P = 1.8$ mJ/cm^2). (a) Lattice displacement $u(t)$ (left axis, blue circles) and reflectance $\rho(t)$ (right axis, red circles). The shaded green box stands for the temporal region before reaching thermal equilibrium among three systems. (b) Normalized differential magneto-optical Kerr rotation $\Delta\theta_K/\theta_K$ (red circles) and Kerr ellipticity $\Delta\varepsilon_K/\varepsilon_K$ (blue circles). (c) Comparison of response times between $u(t)$ and $\Delta\theta_K/\theta_K$. The lattice responds faster by 100~200 fs than the demagnetization.

기존에는 반사율 정보에 3-온도 모델의 피팅을 통해 전자와 격자의 동역학 및 상호작용 메커니즘을 유추했으나, 이 장비로 독립적으로 측정한 격자의 동역학 데이터를 바탕으로 더 명확한 관계를 연구할 수 있을 것이라 예상한다. 일반적으로 반사율의 약 5 ps까지(Fig. 5(a)의 녹색 영역)는 전자의 에너

지 흡수 및 산란에 의한 에너지 분배를 통하여 주로 전자의 신호가 측정되며, 이후 시간영역에는 격자와의 에너지 및 운동량 교환으로 인하여 격자의 신호가 주로 발현된다고 알려져 있다. 그러나 현재의 데이터는 5 ps 이하에서도 큰 격자의 신호가 측정된 것을 보여주기 때문에, 기존의 반사율 해석에 유의할 필요가 있다.

Fig. 5(b)에는 커 회전 $\Delta\theta_K/\theta_K$(빨강) 및 이심률 $\Delta\varepsilon_K/\varepsilon_K$(파랑) 동역학을 측정한 결과를 나타내었다. $\Delta\varepsilon_K/\varepsilon_K$의 노이즈가 더 큰 이유는 정적 이심률 값이 $\varepsilon_K = -0.076^{\circ}$으로 작아 이에 비례한 동역학 신호 레벨이 작기 때문이다. 이 장비의 장점은 커 효과의 실수부와 허수부를 동시에 측정 가능하다는 것이며 이는 추후에 시료에 인가되는 열적 스트레인의 커 회전 및 이심률에 대한 영향을 연구하는데 유용하게 사용될 것이라 예상한다.

마지막으로 Fig. 5(c)에는 이 장비를 구축한 목적인 Fig. 5(a)와 5(b)의 동시 측정된 격자(파랑) 및 자성(빨강) 동역학을 같이 나타내었다. 이 실험 데이터로부터 격자 수축이 탈자 동역학보다 약 100~200 fs 정도 앞서 발생한다는 것을 알 수 있었고, 우리가 지금까지 알고 있었던 스핀 탈자가 수십~수백 fs에서 먼저 발생하고 그 이후 약 수 ps에서 격자 열팽창 및 스트레인 펄스 등의 동역학이 발생한다는 해석에는 부합하지 않는 결과이다. 따라서 앞에서 언급한 UXRD 실험을 통해 탈자 현상이 격자의 운동의 유도한다는 결과가 발표되기도 했지만, Ni 박막을 이용한 본 연구실의 테스트 결과로는 격자의 반응이 탈자 동역학 신호보다 앞서는 것이 관찰되었으므로 위의 두 그룹에서 주장하는 바와 같지 않으며, 이를 명확히 규명하기 위해서는 수평 뿐 아니라 수직 자기 이방성을 갖는 다양한 시료들, 자왜 값이 음수에서 양수로 변화하는 시료 군들에 대한 종합적인 측정과 이해가 필요하다.

IV. 결 론

펨토초 자성(Femtomagnetism) 분야에서 널리 사용되고 있는 펌프-프로브 자기광 측정 장비는 구축이 간단하며 반사율과 커 신호를 동시에 측정할 수 있다. 그러나 커 신호의 실수부(회전)와 허수부(이심률)를 동시에 측정하기 어렵다는 측면이 있으며, 반사율의 경우에도 전자와 격자의 복잡한 상호작용으로 두 신호를 분리하는 방법이 현재까지는 없다. 이를 보완하고자 최근 초고속 X-선 회절 장비를 구축하여 초고속 격자와 탈자의 상호 연관성을 집중적으로 연구하고 있다. 하지만 이 장비 역시 동시 측정이 아니기 때문에 두 신호의 상호작용 메커니즘 해석 시 주의해야 한다. 본 논문에서는 초고속 격자와 스핀 동역학을 동시에 측정할 수 있는 장비인 초고속 사냑 간섭계 구축에 대해 자세히 설명하였다. 간섭계를 기본으로 하기 때문에 자기광 장비보다 광학기기 정렬이 상당히 까다로우며, 광학기기의 성능에 많이 좌우한다. 그러나 이 장비는 격자 뿐 아니라, 반사율, 커 신호의 실수부와 허수부 모두를 동시 측정 가능하다는 장점이 돋보이며, X-선 회절 장비는 단결정 수준의 시료만 측정이 되는 반면, 본 장비는 다결정 시료도 비교적 간편하게 측정이 가능하다. 이를 활용하면 지금까지 서로 복잡하게 얽혀있어 해석이 어려웠던 전자, 격자, 스핀 사이의 상호작용을 각 시스템마다의 독립적인 신호를 바탕으로 이해할 수 있을 것이라 기대한다.

감사의 글

이 논문은 교육부 및 과학기술정보통신부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(2017R1A6A3A04011173, 2021R1A4A1031920).

References

[1] N. Del Fatti, R. Bouffanais, F. Vallée, and C. Flytzanis, Phys. Rev. Lett. **81**, 922 (1998).
[2] C.-K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli, E. P. Ippen, and J. G. Fujimoto, Phys. Rev. B **50**, 15337 (1994).
[3] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, Phys. Rev. Lett. **76**, 4250 (1996).
[4] C. Dornes, Y. Acremann, M. Savoini, M. Kubli, M. J. Neugebauer, E. Abreu, L. Huber, G. Lantz, C. A. F. Vaz, H. Lemke, E. M. Bothschafter, M. Porer, V. Esposito, L. Rettig, M. Buzzi, A. Alberca, Y. W. Windsor, P. Beaud, U. Staub, D. Zhu, S. Song, J. M. Glownia, and S. L. Johnson, Nature **565**, 209 (2019).
[5] A. von Reppert, L. Willig, J.-E. Pudell, S. P. Zeuschner, G. Sellge, F. Ganss, O. Hellwig, J. A. Arregi, V. Uhlíř, A. Crut, and M. Bargheer, Sci. Adv. **6**, eaba1142 (2020).
[6] A. H. Reid, X. Shen, P. Maldonado, T. Chase, E. Jal, P. W. Granitzka, K. Carva, R. K. Li, J. Li, L. Wu, T. Vecchione, T. Liu, Z. Chen, D. J. Higley, N. Hartmann, R. Coffee, J. Wu, G. L. Dakovski, W. F. Schlotter, H. Ohldag, Y. K. Takahashi, V. Mehta, O. Hellwig, A. Fry, Y. Zhu, J. Cao, E. E. Fullerton, J. Stöhr, P. M. Oppeneer, X. J. Wang, and H. A. Dürr, Nat. Commun. **9**, 388 (2018).
[7] D. H. Hurley and O. B. Wright, Opt. Lett. **24**, 1305 (1999).
[8] Y. Shin and J.-W. Kim, Opt. Lett. **46**, 3364 (2021).
[9] A. von Reppert, L. Willig, J.-E. Pudell, M. Rössle, W. Leitenberger, M. Herzog, F. Ganss, O. Hellwig, and M. Bargheer, Appl. Phys. Lett. **113**, 123101 (2018).
[10] S. Chikazumi, Physics of Ferromagnetism (Clarendon, Oxford, 1997), 2nd ed., p. 361.