

Ultrafast Dynamics of Magnon Propagation

Changmin Lee*

Department of Physics, Hanyang University, Seoul 04763, Korea

(Received 21 December 2023, Received in final form 26 December 2023, Accepted 26 December 2023)

Spin waves, or magnons, are waves resulting from the disturbance of spin alignment in magnetic materials. When magnons propagate within a solid, the absence of moving parts is believed to lead to smaller heat dissipation. This review introduces experimental methods for generating and measuring propagating magnons in magnetic materials using ultrafast laser pulses. Modern ultrafast lasers typically feature short pulse widths of 100 femtoseconds, enabling a wide bandwidth ranging from gigahertz to terahertz frequencies. In this scenario, optically generated magnons exhibit much longer wavelengths than the lattice parameters of solids, underscoring the crucial role of long-range interactions among magnetic dipoles in the dispersion relation near the Brillouin zone center. Such interactions manifest not only in ferromagnets but also in antiferromagnets, providing a foundational framework for investigating magnon transport and advancing the development of future magnonic devices.

Keywords : magnonics, spin waves, magnon transport, ultrafast optics, time-resolved, magneto-optics

마그논 전파의 초고속 동역학

이창민*

한양대학교 물리학과, 서울시 성동구 왕십리로 222, 04763

(2023년 12월 21일 받음, 2023년 12월 26일 최종수정본 받음, 2023년 12월 26일 게재확정)

마그논 또는 스핀파는 자성 물질의 스핀 배열이 흐트러짐에 따라 발생하는 파동이다. 마그논이 전파될 때 고체 내에 움직이는 부분이 없어 열 손실이 적게 일어날 것으로 기대된다. 본 해설논문에서는 자성물질 내에서 전파되는 마그논을 초고속 레이저 펄스를 사용하여 생성하고 측정하는 방법들을 소개한다. 최신 초고속 레이저는 대략 100 펨토초의 짧은 펄스 폭을 가지고 있어 기가헤르츠에서 테라헤르츠에 이르는 넓은 주파수 대역을 측정할 수 있다. 이때 광학적으로 생성된 마그논은 고체의 격자 상수보다 훨씬 긴 파장을 가지며, 자기 쌍극자 간의 원거리 상호작용이 브릴루앙 영역 중심 부근에서 분산 관계에 중요한 영향을 끼친다. 이러한 상호작용은 강자성체뿐 아니라 반강자성체에서도 나타날 수 있으며, 마그논 수송 현상 연구와 미래 마그논닉 소자 개발에 중요한 기반을 제공할 것으로 기대한다.

주제어 : 마그논닉스, 스핀파, 마그논 수송, 초고속 광학, 시간분해, 자기광학

I. 서 론

스핀 자유도(spin degrees of freedom)를 미래 전자 소자에 활용하는 것은 자성 연구의 오랜 숙원이다. 이 목표를 달성하기 위한 여러 방법 중에서 스핀파(spin waves) 또는 마그논(magnons)을 활용한 스핀 정보 전달 연구가 활발하게 이루어지고 있다[1-5]. 스핀파는 자성 물질의 스핀 배열이 흐트러짐에 따라 발생하는 파동으로서, 정수배의 스핀 각운동량

(spin angular momentum)을 실어나르는 스핀파의 양자화된 준입자(quantized quasiparticle)를 마그논이라 한다(Fig. 1(a) 참고). 최근 스핀 홀 효과(spin Hall effect)에 기반한 전기적(electrical) 측정 결과들을 통해 스핀파가 약 수십 마이크로미터 가량 전파될 수 있다는 사실이 밝혀졌지만, 이러한 파동들이 어떠한 주파수와 파장을 갖고 있으며, 또한 어떠한 상호작용을 거쳐 얼마나 빠르게 전파되는지에 대한 이해는 여전히 매우 미흡한 상태이다. 특히 강한 자기 이방성(magnetic anisotropy)과 교환 상호작용(exchange interaction)을 띠는 반강자성체(antiferromagnets)의 마그논은 최소 테라헤르츠의 높은 주파수를 갖는데, 이러한 스핀파의 원거리 수송 현상은 향

© The Korean Magnetism Society. All rights reserved.

*Corresponding author: Tel: +82-2-2220-0918,

e-mail: cmlee23@hanyang.ac.kr

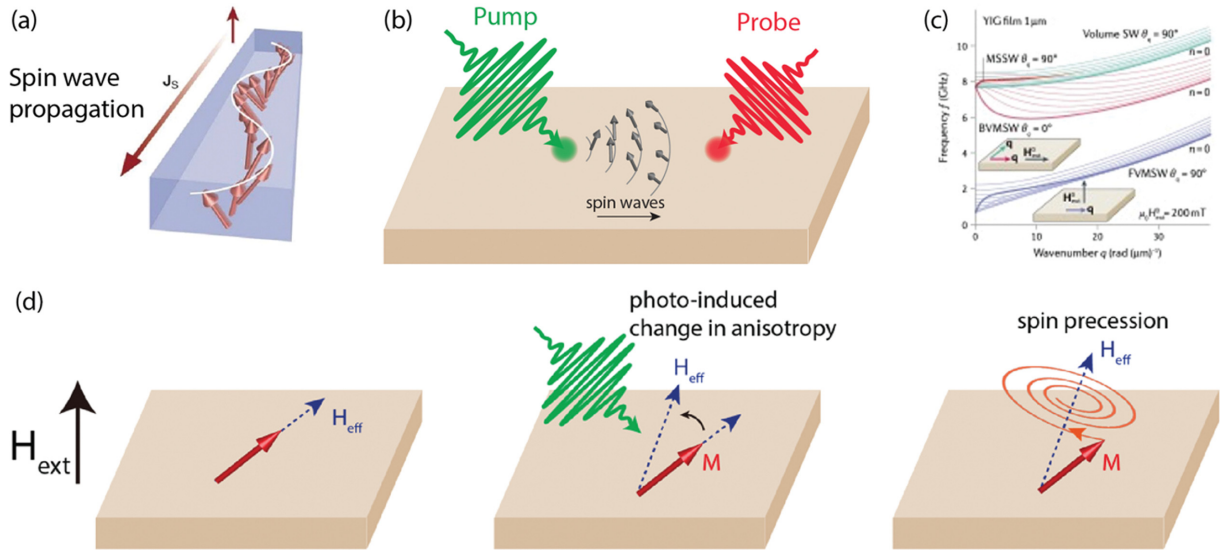


Fig. 1. (Color online) (a) Schematic of spin wave propagating within a magnetically ordered material. Figure reproduced from Ref. 1 (b) A simplified cartoon of a time-resolved magneto-optic experiment. The (green) pump beam photoexcites the spin waves, whose propagation is subsequently captured by the (red) probe beam (c) Dispersion relations of magnetostatic spin waves in a YIG (Yttrium iron garnet) film. A finite velocity (slope) can be observed at $q = 0$. Figure reproduced from Ref. 5. (d) After photoexcitation with the pump pulse, magnetization initiates precessional motion by spiraling to align with H_{eff} . Figure reproduced from Ref. 1.

후 초고속 스핀 자유도 기반 기술 발전에 큰 도움이 될 것으로 기대된다. 본 해설논문에서는 자성물질의 마그논 전파 현상을 더욱 정량적이고 체계적으로 이해할 수 있는 발판을 마련할 초고속 레이저 기반의 시간분해 자기광학(time-resolved magneto-optics) 측정 방법들을 소개한다.

II. 마그논의 광학적 생성과 측정

상용화된 최신 초고속 레이저(ultrafast lasers)는 대략 100 펨토초(100 fs, 또는 10^{-13} 초)의 펄스 폭(pulse width)을 갖추고 있는데, 이러한 뛰어난 시간 분해능을 활용하여 자성 물질 내에서 발생하는 다양한 동역학적인 현상을 측정할 수 있다. 초고속 광학(ultrafast optics)에서 흔히 사용되는 측정 중 하나는 펌프-프로브 실험(pump-probe experiment)이다. 이 실험에서는 먼저 펌프 레이저 펄스를 이용하여 시료에 일시적인 변화를 유도하고, 뒤이어 따라오는 프로브 레이저 펄스로 시료의 변화를 측정한다.

특히 짧은 시간 내에 강한 전기장을 방출하는 초고속 레이저의 특성상 자성 물질 내에 결맞은(coherent) 마그논의 광여기(photoexcitation)를 가능하게 한다. 예를 들어 원편광된(circularly polarized) 펌프 레이저 펄스를 사용하면 역 패러데이 효과(inverse Faraday effect)를 통해 일시적으로 자성체에 스핀을 주입시켜 스핀파를 발생시킬 수 있다[6]. 이때 편광의 꼬인 방향(helicity)에 따라 주입되는 스핀의 방향이 달라지고, 이에 따라 생성된 마그논의 위상(phase) 또한 서로

180도의 차이를 보이게 된다. 한편 알짜 자기 모멘트(net magnetic moment)를 가지지 않는 반강자성체의 경우에는 이와 유사한 역 코튼-무튼 효과(inverse Cotton-Moutton effect)로 인해 선형 편광된(linearly polarized) 펌프 레이저 펄스가 네엘 벡터(Néel vector, 반강자성체의 스핀 방향을 나타내는 벡터)를 일시적으로 회전시키고, 이로 인하여 스핀파가 발생한다[7].

위의 두가지 광유도(photo-induced) 현상은 감쇠(damping)가 적은 자성 절연체(magnetic insulator)에서 효율적으로 발생하는데, 자성 금속의 경우에는 다소 다른 방식의 마그논 생성 과정을 필요로 한다. Fig. 1(d)에서 나타난 바와 같이, 먼저 물질의 자화와 수직인 방향으로 자기장을 가해준다. 이때 펌프 레이저 펄스가 시료에 다다르면 국소적으로 온도나 에너지 상태를 변화시키고, 이로 인하여 유효 자기장(effective magnetic field)의 자기장의 방향도 일시적으로 틀어지게 된다. 물질이 다시 평형 상태로 되돌아오는 동안 유효 자기장 방향을 중심으로 자화의 세차 운동, 즉 스핀 파동이 발생하게 된다[8-10].

이러한 방식으로 생성된 마그논은 시간 대칭성(time-reversal)이 깨진 강자성체의 경우 자기광학 커 효과(magneto-optic Kerr effect, MOKE) 혹은 패러데이 회전(Faraday effect)을 통하여 측정할 수 있다. 강자성체에 입사되는 원편광 레이저는 왼쪽과 오른쪽 편광 사이에 약간의 굴절률 차이를 보이게 되는데, 이는 선형 편광을 지닌 프로브 빔의 편광 회전(polarization rotation)나, 서로 반대 방향으로 꼬인 원편

광 사이의 흡수율 차이인 원편광 이색성(circular dichroism)을 일으킨다. 이때 펌프와 프로브 레이저 빔 사이의 시간차(time delay)를 조절해가며 편광의 변화를 측정하면, 마그논 발생으로 인한 자화의 진동을 약 100 펨토초의 시간 분해능을 갖추고 측정할 수 있다. 반면 자기광학 커 혹은 페르데이 효과를 띠지 않는 반강자성체의 경우 서로 수직인 선형편광 사이의 흡수율 차이인 선편광 이색성(linear dichroism)이나 굴절률 차이인 선편광 복굴절(linear birefringence)을 통하여 마그논을 측정할 수 있다.

III. 마그논의 분산 관계

브릴루앙 영역(Brillouin zone) 중심 근처에서의 마그논 분산관계는 다음과 같은 이차함수로 근사할 수 있다.

$$E(q) = \hbar\omega(q) \approx Dq^2 + \hbar\omega_0$$

여기서 D 는 교환 상호작용의 경직성(exchange stiffness), 그리고 ω_0 는 마그논 갭(magnon gap)을 의미한다. 이때 레이저 초점은 회절 한계로 인해 고체의 격자 상수(lattice constant)보다 훨씬 큰 값을 지니는데, 이는 광생성된 마그논이 역격자 공간(reciprocal space)인 브릴루앙 영역에서는 중심 근처의 매우 작은 파수(wavenumber) 값을 가진다는 것($q \approx 1 \mu\text{m}^{-1}$)을 의미한다. 즉, 위의 교환 상호작용에 의한 이차함수 마그논 분

산관계에 의하면 $q=0$ 근처에서 마그논의 군속도(group velocity, $= \frac{d\omega}{dq}$) 또한 아주 작은 값을 갖게 되어 자성 물질 내에서 효율적으로 전파되지 않는다고 해석할 수도 있다.

하지만 파수가 낮은, 혹은 파장이 긴 마그논의 경우, 인접한 스핀들간의 교환 상호작용보다 서로 멀리 떨어진 자기 모멘트간의 원거리 자기 쌍극자 상호작용(long-range magnetic dipole interactions)이 분산관계에 훨씬 더 중요한 영향을 끼친다는 것이 널리 알려져 있다. 데이먼-에쉬박 모드(Damon-Eshbach modes)로도 알려진 정자기의 스핀파(magnetostatic spin waves)[11,12]는 이러한 쌍극자 상호작용(dipolar interactions)으로 인해 Fig. 1(c)에 나타난 것과 같이 정확히 $q=0$ 지점에서도 유한한 군속도를 가질 수 있다. 즉, 초고속 레이저 펄스로 생성하여 긴 파장을 가진 마그논도 물질 내에서 효율적으로 전파될 수 있다는 것을 의미한다.

IV. 시간분해 자기광학 현미경

광학적으로 생성된 마그논의 전파 혹은 수송 현상을 직접적으로 관측하기 위하여 펨토초 레이저를 바탕으로 한 시간분해 자기광학 현미경(time-resolved magneto-optical microscopy)을 고안할 수 있다[13,14]. Fig. 2(a)에 보이는 것과 같이 프로브 빔(빨강)의 초점은 고정시킨 상태에서 펌프 빔(녹색)의

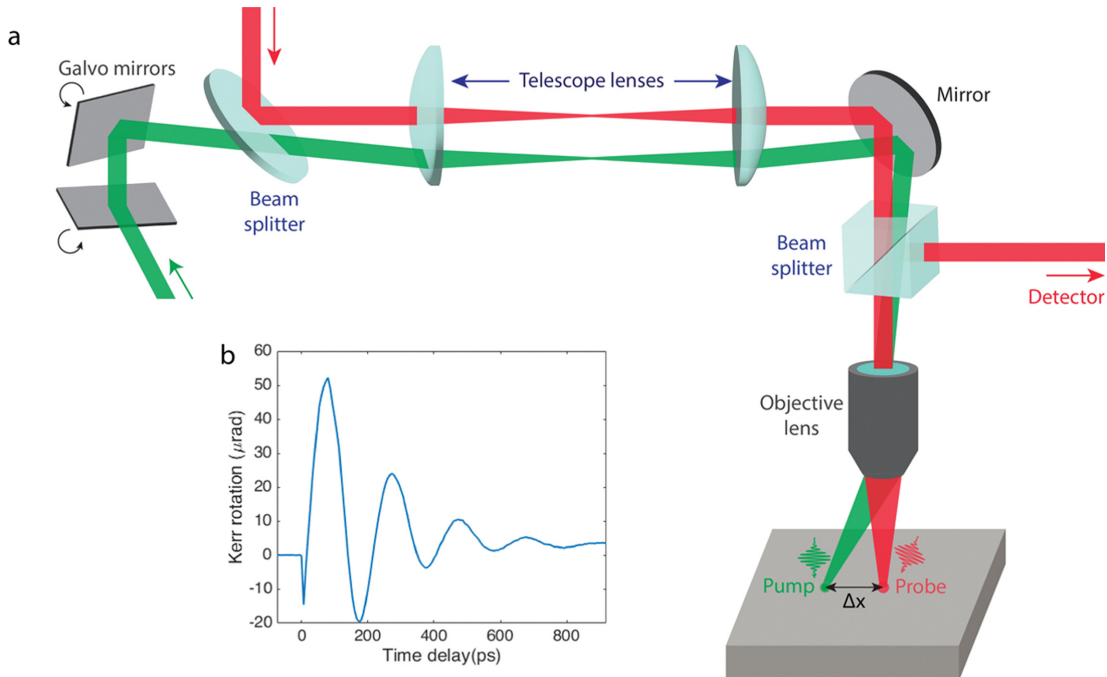


Fig. 2. (Color online) (a) Overview of a time-resolved MOKE microscopy setup. The galvanometer mirrors and the 4f geometry enable scanning of the pump beam. Figure reproduced from Ref. 14. (b) A tr-MOKE measurement performed at $T = 2.5$ K with an out-of-plane field of 0.5 T applied to a single crystal Fe_3Sn_2 sample.

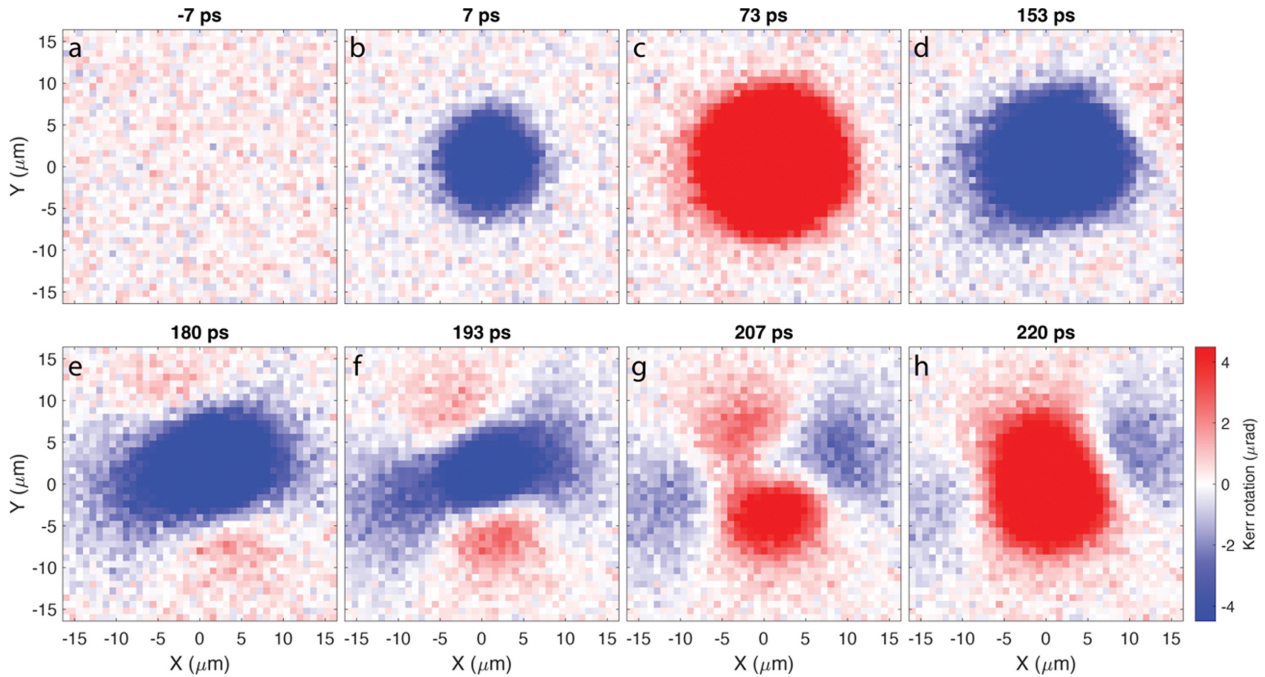


Fig. 3. (Color online) (a)~(h) Snapshots of 2D MOKE microscopy maps. The images are obtained by raster scanning the pump beam and measuring the MOKE signal at each fixed time delay between the pump and probe laser pulses. The propagation is clearly anisotropic at later time delays.

위치를 검류계 거울로 자유롭게 조절하면 시간(~100 펨토초) 및 공간(~1 μm) 분해능을 갖춘 정밀 자기광학 현미경 시스템이 완성된다. 여기에 더해 외부 자기장을 인가할 수 있거나, 펌프/프로브 레이저의 파장을 전자기구조의 특정 공명 주파수 근처로 조절할 수 있으면 더욱 다양한 자성 물질들을 연구할 수 있다.

시간분해 자기광학 현미경 시스템을 활용한 카고메 격자(Kagome lattice) 강자성체 Fe_3Sn_2 의 측정 결과는 Fig. 2(b)와 같다. 먼저 펌프와 프로브 빔의 위치가 서로 일치할 때에는 마그논 발생으로 인한 시간분해 MOKE 신호값이 최대가 되는데, 대략 5 GHz의 주파수를 가진 자화 진동을 명확하게 확인할 수 있다. 나아가 펌프와 프로브 사이의 거리를 연속적으로 주사(scan)하고, 펌프-프로브 시간차에 따른 스냅샷(snapshots)을 측정하면, 마그논이 특정 방향(약 2시/8시) 방향으로 잘 뻗어간다는 것을 관측할 수 있다(Fig. 3 참고). 또한 대략 207 피코초(picoseconds)가 지난 시점에서는 2시/8시 방향과 5시/11시 방향 사이에 180도의 위상 차이도 발생하는데, 이는 Fe_3Sn_2 의 자기 이방성으로 인하여 $q=0$ 근처에서 안장점(saddle point)과 같은 마그논 분산 관계를 보이기 때문이다. 해당 연구 결과에서 이에 추가로 $\sqrt{x}$ 형태를 띤 정자기의 스핀파 분산관계와, 가우시안(Gaussian) 함수의 공간 분포(spatial profile)를 가진 레이저 펄스간의 독특한 빛-물질 상호작용으로 인하여, 실제 마그논 파속(wavepacket)보다 스핀 정

보가 더욱더 빨리 전달되는 스핀파 전구체(precursor) 현상이 발견되었다[14].

자기 쌍극자 상호작용은 자기 모멘트를 가진 강자성체에서만 발생한다고 널리 알려져 있었으나, 사실 이미 1980년에 Robert E. Camley에 의해 알짜 모멘트가 없는 반강자성체에서도 나타날 수 있다고 밝혀졌다[15]. 이는 마그논이 발생하는 동안 스핀이 세차 운동을 진행하면서 동역학적인 자화가 발생하고, 이는 인접한 스핀들에 자기 쌍극자 상호작용을 일으키기 때문이다. 최근 반데르발스(van der Waals) 반강자성체인 CrSBr에서도 초고속 레이저 펄스로 발생시킨 스핀파가 수 마이크로미터가량 뻗어 나간다는 것이 실험적으로 확인되었는데[16](Fig. 4a-c), 이 전파 현상도 반강자성체에서 일시적으로 발생하는 자기 모멘트로 인한 정자기의 스핀파가 $q=0$ 근처에서 유한한 속도를 가지기 때문인 것으로 추정되고 있다[17](Fig. 4d).

V. 맺음말

본 해설논문에서는 자성체의 마그논 수송 현상을 효율적으로 관측할 수 있는 초고속 자기광학 현미경 측정법에 대하여 알아보았다. 특히 테라헤르츠에 이르는 높은 마그논 주파수를 가지고, 또한 외부 자기장에 의해 거의 영향을 받지 않는 반강자성체 연구에서 초고속 광학 실험이 앞으로 더욱더 중요

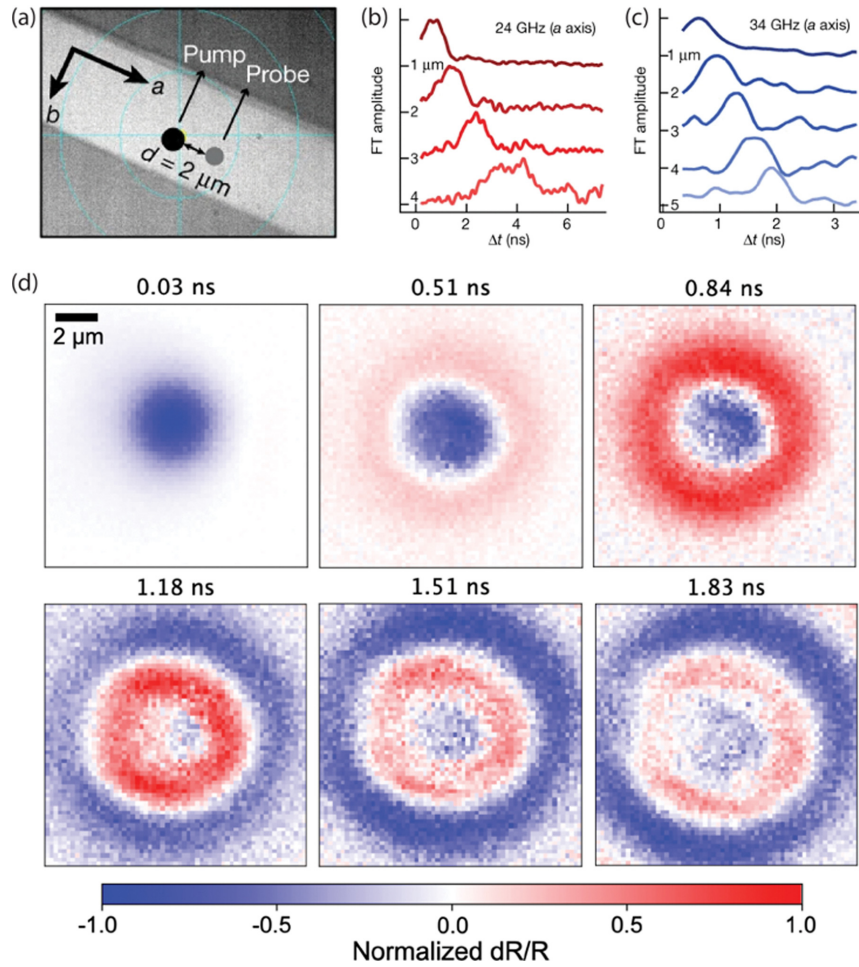


Fig. 4. (Color online) (a) Schematic of a time-resolved microscopy measurements taken on a van der Waals antiferromagnet CrSBr. (b), (c) Both 24 GHz and 34 GHz magnon modes are observed to propagate macroscopic distances. Figures reproduced from Ref. 16. (d) Snapshots of 2D microscopy maps taken on CrSBr clearly reveal uniform, radial propagation. Figure reproduced from Ref. 17.

한 역할을 맡을 것이라고 기대한다.

감사의 글

이 논문은 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 개인기초연구사업(우수신진연구, RS-2023-00212540)의 지원을 받아 수행되었음.

References

- [1] Y. Kajiwara, *et al.*, Nature **464**, 262 (2010).
- [2] L. J. Cornelissen, J. Liu, R. A. Duine, J. B. Youssef, and B. J. van Wees, Nat. Phys. **11**, 1022 (2015).
- [3] R. Lebrun, *et al.*, Nature **561**, 222 (2018).
- [4] A. V. Chumak, V. I. Vasyuchka, A. A. Serga, and B. Hillebrands, Nat. Phys. **11**, 453 (2015).
- [5] P. Pirro, V. I. Vasyuchka, A. A. Serga, and B. Hillebrands, Nat. Rev. Mater. **6**, 1114 (2021).
- [6] C. D. Stanciu, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 047601 (2007).
- [7] A. M. Kalashnikova, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 167205 (2007).
- [8] W. K. Hiebert, A. Stankiewicz and M. R. Freeman, Phys. Rev. Lett. **79**, 1134 (1997).
- [9] Y. Acremann, *et al.*, Science **290**, 492 (2000).
- [10] M. C. Langner, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 177601 (2009).
- [11] J. R. Eshbach and R. W. Damon, Phys. Rev. **118**, 1208 (1960).
- [12] R. W. Damon and J. R. Eshbach, J. Phys. Chem. Solids **19**, 308 (1961).
- [13] T. Satoh, *et al.*, Nat. Photonics **6**, 662 (2012).
- [14] C. Lee, *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. **120**, e2220589120 (2023).
- [15] R. E. Camley, Phys. Rev. Lett. **45**, 283 (1980).
- [16] Y. J. Bae, *et al.*, Nature **609**, 282 (2022).
- [17] Y. Sun, *et al.*, Universal spin wavepacket transport in van der Waals antiferromagnets. Preprint at <https://doi.org/10.48550/arXiv.2309.03278> (2023).