

Министерство науки и высшего образования Российской Федерации  
Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук  
Отделение физики твердого тела  
Лаборатория физики ферроиков

Кунту Дарья Вадимовна

**Лазерно-индуцированная динамика намагниченности  
в тонких пленках и двумерных структурах**

Научный доклад

Направление: 03.06.01 Физика и астрономия

Специальность: 1.3.8 Физика конденсированного состояния

Санкт-Петербург, 2024

Научный руководитель:

PhD (кандидат наук),  
Калашникова Александра Михайловна,  
и.о. ведущего научного сотрудника,  
заведующий лабораторией, лаб. Физики ферроиков,  
ФТИ им. А. Ф. Иоффе

Рецензенты:

кандидат физико-математических наук,

**Усачёв Павел Анатольевич**

старший научный сотрудник, лаб. Оптических явлений в  
сегнетоэлектрических и магнитных  
кристаллах, ФТИ им. А. Ф. Иоффе

доктор физико-математических наук,

**Чернов Александр Игоревич**

ведущий научный сотрудник, зав. лаб. Физики магнитных  
гетероструктур и спинтроники для энергосберегающих  
информационных технологий МФТИ,  
Научный руководитель группы Квантовая спинtronика и  
низкоразмерные материалы, Российский квантовый центр

## Содержание

<b>Введение</b> .....	4
<b>Глава 1. Обзор литературы</b> .....	8
§ 1. Актуальность .....	8
§ 2. Исследуемые материалы.....	10
<b>Глава 2. Эксперимент</b> .....	12
§ 1. Характеризация образцов .....	12
§ 2. Методика накачки-зондирования.....	15
<b>Глава 3. Лазерно-индуцированная динамика обменного линейного дихроизма в NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub></b> .....	17
§ 1. Экспериментальные результаты .....	17
§ 2. Численное моделирование критического поведения динамики намагниченности в NiPS <sub>3</sub> и FePS <sub>3</sub> .....	22
<b>Заключение</b> .....	28
<b>Список использованных источников</b> .....	29
<b>Список публикаций автора по теме научного доклада</b> .....	33

## Введение

Исследование сверхбыстрой оптически-индуцированной магнитной динамики является перспективной и широко обсуждаемой в научном сообществе тематикой. Во-первых, ее актуальность обусловлена фундаментальной значимостью исследования механизмов взаимодействия коротких лазерных импульсов и магнитоупорядоченной среды. В настоящее время многие вопросы о механизмах, лежащих в основе динамики намагниченности при оптическом возбуждении, а также о факторах, влияющих на ее особенности, остаются предметом дискуссии. Во-вторых, возможность сверхбыстрого изменения магнитных свойств материала при помощи лазерного воздействия открывает перспективы по разработке высокотехнологичных вычислительных, сенсорных и запоминающих устройств с повышенной производительностью и энергоэффективностью. В этом аспекте слоистые магнетики представляют особую ценность в качестве объекта исследования. С одной стороны, среди них представлены различные типы материалов как в отношении электрической проводимости и оптических свойств, так и разнообразия видов магнитного упорядочения. С другой стороны, благодаря слоистой структуре, в таких соединениях могут возникать эффекты, связанные с размерностью материала. Слоистые магнитные кристаллы позволяют исследовать как проявления квазидвумерного магнетизма, так и возможности преодоления ограничений на магнитное упорядочение в двумерном пределе. Кроме того, возможность механического расслаивания таких материалов открывает перспективы по созданию комбинированных структур для разработки новых устройств с уникальными свойствами.

**Объектом исследования** настоящей работы стали чешуйки слоистых ван-дер-ваальсовых антиферромагнетиков  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$ . Выбор был

обусловлен тем, что оба соединения являются частью семейства тиофосфатов переходных металлов, относятся к одному кристаллографическому классу и проявляют зигзагообразный тип магнитного упорядочения. Различия же между ними заключаются в том, что критические магнитные свойства  $\text{NiPS}_3$  описываются двумерной XY-моделью, а  $\text{FePS}_3$  – двумерной моделью Изинга.

**Цель работы** заключалась в экспериментальном выявлении особенностей лазерно-индуцированной динамики магнитного упорядочения в  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$ , с акцентом на сходства и различия в изменениях магнитного порядка при оптическом возбуждении в области фазового перехода парамагнетик-антиферромагнетик.

Для достижения обозначенной цели в работе решались следующие **задачи**:

1. Характеризация образцов чешуек  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$  с целью установления соответствия их магнитных свойств имеющимся литературным данным.
2. Измерение лазерно-индуцированной динамики по методике фемтосекундной накачки-зондирования с временным разрешением при пониженных температурах, соответствующих области вблизи температур Нееля для исследуемых материалов.
3. Проведение численного моделирования лазерно-индуцированной магнитной динамики в рамках двух-температурной модели с учетом температурных изменений параметра порядка в окрестности фазового перехода.
4. Анализ и интерпретация экспериментальных наблюдений с учетом результатов численного моделирования в терминах сверхбыстрого оптического воздействия на решеточную и спиновую подсистемы магнитного материала, а также динамики эффективной спиновой

температуры и ее связи с критическим поведением антиферромагнитного параметра порядка.

**Новизна** полученных результатов заключается в том, что впервые продемонстрированы особенности лазерно-индуцированного размагничивания в  $\text{NiPS}_3$  на пикосекундном временном масштабе и определены характерные времена этого процесса. Полученные данные дополняют имеющиеся в литературе сведения о характерных временах размагничивания в материалах из семейства тиофосфатов переходных металлов  $M\text{PS}_3$  ( $M = \text{Mn}, \text{Fe}, \text{Ni}, \text{Co}$ ) и позволяют сделать предположение о природе имеющихся у них различий в магнитной динамике, возникающей при лазерном возбуждении.

**Достоверность** результатов подтверждается применением надежных, широко используемых и отработанных ранее экспериментальных методик. Воспроизводимость экспериментальных результатов проверялась на каждом этапе измерений. При проведении численного моделирования использовалась двух-температурная модель, являющаяся одним из базовых подходов к описанию сверхбыстрого оптического воздействия на материал. Для учета критического поведения намагниченности была применена теория фазовых переходов Ландау. Полученные в работе результаты не противоречат известным литературным данным.

**Апробация работы.** Результаты работы докладывались лично автором на семинарах лаборатории физики ферроиков ФТИ им. А. Ф. Иоффе, а также на следующих российских и международных конференциях:

1. E. A. Arkhipova, D. V. Kuntu, L. A. Shelukhin, A. M. Kalashnikova, Laser-induced spin dynamics in thin layers of van der Waals antiferromagnets  $\text{FePS}_3$  and  $\text{NiPS}_3$ . XXXIII Всероссийская школа-семинар «Волновые явления: физика и применения» имени А.П. Сухорукова («Волны-2022»), г. Москва, 5-10 июня 2022 г. Стендовый доклад.

2. D. V. Kuntu, E. A. Arkhipova, L. A. Shelukhin, F. Mertens, M. A. Prosnikov, I. A. Eliseyev, A. N. Smirnov, V. Yu. Davydov, S. Mañas-Valero, E. Coronado, M. Cinchetti, A. M. Kalashnikova, Ultrafast laser-induced spin dynamics in van der Waals 2D antiferromagnets NiPS<sub>3</sub> and FePS<sub>3</sub>. Trends in MAGnetism 2023. Rome, Italy, 4-8 September 2023. Стендовый доклад.
3. Д. В. Кунту, Е. А. Архипова, Л. А. Шелухин, F. Mertens, М. А. Просников, И. А. Елисеев, А. Н. Смирнов, В. Ю. Давыдов, S. Mañas-Valero, E. Coronado, M. Cinchetti, А. М. Калашникова. Особенности сверхбыстрого лазерно-индуцированного размагничивания в ван-дер-ваальсовых антиферромагнетиках NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub>, ЗАСЕДАНИЕ секции “Магнетизм” Научного совета РАН по физике конденсированных сред, Москва, ИФП РАН, 7–8 декабря 2023 г., Устный доклад.
4. Д. В. Кунту, Е. А. Архипова, Л. А. Шелухин, F. Mertens, М. А. Просников, И. А. Елисеев, А. Н. Смирнов, В. Ю. Давыдов, S. Mañas-Valero, E. Coronado, M. Cinchetti, А. М. Калашникова. Лазерно-индуцированное размагничивание в ван-дер-ваальсовых антиферромагнетиках NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub>, XXVIII Международный симпозиум «Нанозондирование и наноэлектроника», в г. Нижний Новгород, 11–15 марта 2024 г., Стендовый доклад.

По результатам работы была опубликована 1 статья в международном рецензируемом журнале. Полный список публикаций автора по теме работы приведен на с. 33.

**Личный вклад автора:** автором лично проводилось измерение лазерно-индуцированной динамики по методике накачки-зондирования. Также автор принимал непосредственное участие в необходимых модификациях и юстировке экспериментальной установки. Автором лично проведена существенная часть обработки экспериментальных результатов, а также численное моделирование.

## Глава 1. Обзор литературы

### § 1. Актуальность

Открытие явления сверхбыстрого размагничивания, а именно разрушения магнитного упорядочения в магнитных материалах при возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами, способствовало значительному росту количества экспериментальных и теоретических исследований в области оптически-индуцированной магнитной динамики. В результате были обнаружены возможность переключения намагниченности с помощью однократного и многократного импульсного воздействия [1–3], генерации сверхкоротких спиновых токов [4] и излучения широкополосных ТГц-импульсов [5]. В металлах размагничивание происходит на временных масштабах не более нескольких сотен фемтосекунд [6–8], которые определяются электрон-фононным взаимодействием [9]. В диэлектриках характерные времена этого процесса обусловлены в основном спин-решеточным взаимодействием, а размагничивание происходит в субнаносекундном диапазоне [10,11]. Критические явления, проявляющиеся вблизи температуры магнитного фазового перехода, также оказывают влияние на динамику сверхбыстрого размагничивания [12,13]. Следовательно, тип магнитного упорядочения и его размерность могут играть не менее важную роль в этом процессе.

Слоистые магнетики, такие как ван-дер-ваальсовы кристаллы [14,15], органо-неорганические гибриды [16], МАХ-фазы [17] и подобные им структуры, открывают перспективы по исследованию сверхбыстрой магнитной динамики и ее связи с особенностями магнитного упорядочения. В рамках каждого семейства, такие материалы имеют схожую кристаллическую структуру, при этом демонстрируя большое разнообразие спиновых конфигураций. Кроме того, этим соединениям свойственно слабое обменное взаимодействие между слоями, что делает их квазидвумерными (квази-2D)

магнетиками. Таким образом, слоистые кристаллы являются подходящими объектами для исследования способов преодоления ограничений на магнитное упорядочение в 2D пределе, которые накладывает теорема Мермина-Вагнера [18]. Существует возможность расслаивания ван-дер-ваальсовых кристаллов вплоть до нескольких слоев и даже моноатомного предела [19–22], что может существенно влиять на их магнитный порядок. Так, выявлено, что что может происходить изменение спиновой конфигурации [23] или полное подавление магнитного порядка [24], хотя последнее наблюдение остается предметом обсуждения [25]. Лазерно-индуцированная спиновая динамика в слоистых магнетиках в последнее время стала предметом активного изучения. Исследуются как проявления квази-2D магнитного упорядочения [26], так и спин-решеточное взаимодействие и его влияние на оптически-индуцированные процессы в обеих подсистемах [27–31]. Ключевой темой во многих из этих работ является критическое поведение лазерно-индуцированной динамики намагниченности [30–32]. При этом ван-дер-ваальсовы тиофосфаты переходных металлов  $MPS_3$  ( $M = Mn, Fe, Co, Ni$ ) привлекают особое внимание в связи с присущим им разнообразием типов антиферромагнитного порядка [14].

Помимо фундаментальной значимости исследования лазерно-индуцированной магнитной динамики в 2D пределе, особый интерес также представляют перспективы по использованию ван-дер-ваальсовых магнетиков и, в частности, тиофосфатов переходных металлов, при создании новых устройств электроники и спинтроники [33,34]. Кроме того, слоистая структура таких материалов открывает возможности по комбинированию слоев различных соединений, позволяя проектировать разнообразные гетероструктуры с новыми уникальными свойствами [22,35,36].

## § 2. Исследуемые материалы

$\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$  являются ван-дер-ваальсовыми кристаллами и принадлежат к семейству тиофосфатов переходных металлов  $\text{MPS}_3$  [14]. Они относятся к моноклинной кристаллической системе, пространственная группа  $C2/m$  (№12) [37]. Как показано на Рис. 1 (a) и 1 (b) ионы переходных металлов образуют сотовую структуру в плоскости  $ab$  [38,39]. Ширина запрещенной зоны у  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$  составляет 1.7 эВ и 1.5 эВ соответственно. Среди представителей семейства  $\text{MPS}_3$  тиофосфаты никеля и железа проявляют наибольшее сходство с точки зрения спиновой конфигурации. К тому же они занимают промежуточное место по степени размораживания орбитального момента магнитного иона. Так в  $\text{MnPS}_3$  ион  $\text{Mn}^{2+}$  имеет нулевой орбитальный момент, а в  $\text{CoPS}_3$  орбитальный момент магнитного иона наибольший [38]. Таким образом, они хорошо подходят для сравнительного исследования лазерно-индуцированного размагничивания.

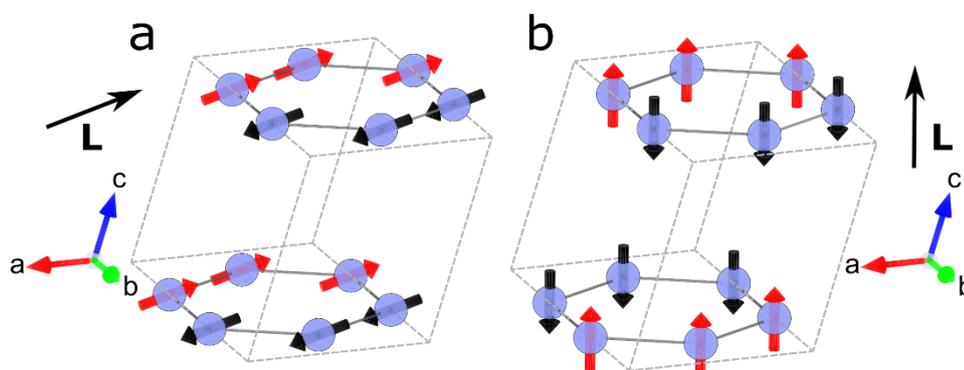


Рисунок 1. Магнитная структура (a)  $\text{NiPS}_3$  и (b)  $\text{FePS}_3$ .

Температура Нееля составляет для  $\text{NiPS}_3$   $T_N = 155$  К, а для  $\text{FePS}_3$   $T_N = 118$  К [38]. Как можно увидеть на Рис. 1 (a), в  $\text{NiPS}_3$  магнитные моменты образуют ферромагнитно связанные зигзагообразные цепочки. Цепочки связаны между собой антиферромагнитно в плоскости  $ab$  и ферромагнитно с цепочками в соседних слоях вдоль оси  $c$  [39]. При толщине образца более 50 нм антиферромагнитный вектор  $L$  направлен вдоль оси  $c$  под небольшим

углом к плоскости  $ab$  [39,40]. Критические магнитные явления в  $\text{NiPS}_3$  могут быть описаны 2D  $XY$ - или 2D  $XXZ$ -моделью [24]. В  $\text{FePS}_3$  зигзагообразное магнитное упорядочение в плоскости  $ab$  аналогично  $\text{NiPS}_3$ , за исключением того, что между соседними слоями цепочки магнитных моментов связаны антиферромагнитным взаимодействием [Рис. 1 (b)]. В  $\text{FePS}_3$  вектор  $L$  перпендикулярен плоскости слоя, а критическое поведение магнетизма описывается 2D-моделью Изинга [39]. В  $\text{NiPS}_3$  магнитное упорядочение сохраняется по меньшей мере до двухслойного предела [24,25], а в  $\text{FePS}_3$  проявляется и в монослоях [41].

В настоящей работе было проведено сравнительное исследование сверхбыстрой лазерно-индуцированной магнитной динамики в чешуйках  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$  с акцентом на сходства и различия в критическом поведении динамики размагничивания. Лазерно-индуцированные изменения магнитного порядка детектировались с помощью измерения обменного линейного дихроизма с временным разрешением по методике накачки-зондирования. С целью анализа экспериментальных результатов было проведено численное моделирование в рамках двух-температурной модели, описывающей температурную динамику спиновой и решеточной подсистемы материала при лазерном возбуждении. Различия критических свойств  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$  были учтены в расчетах согласно теории фазовых переходов второго рода. Также была выявлена связь между степенью увеличения времени размагничивания в области температуры Нееля и особенностями магнитной теплоемкости.

## Глава 2. Эксперимент

### § 1. Характеризация образцов

Образцы чешуек  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$  были предоставлены научной группой E. Coronado (Instituto de Ciencia Molecular, Universidad de Valencia, Paterna, Spain). Чешуйки  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$  были получены из кристаллов, изготовленных по технологии твердофазной реакции, как описано подробнее в работах [28,42]. В манипуляционной ручной камере в аргоновой атмосфере методом механической эксфолиации с помощью клейкой ленты чешуйки были перенесены на подложки Si толщиной 700 мкм, покрытые 285-нанометровым слоем  $\text{SiO}_2$ .

На Рис. 2 представлены изображения исследованных чешуек, полученные с помощью атомной силовой микроскопии (измерения и последующая обработка проведены Е. А. Архиповой, м.н.с. лаб. физики ферроиков ФТИ им. А. Ф. Иоффе). Латеральные размеры чешуек составляют около 100 мкм, а средняя толщина равна примерно 200 нм, что предполагает, что их свойства соответствуют объемному материалу.

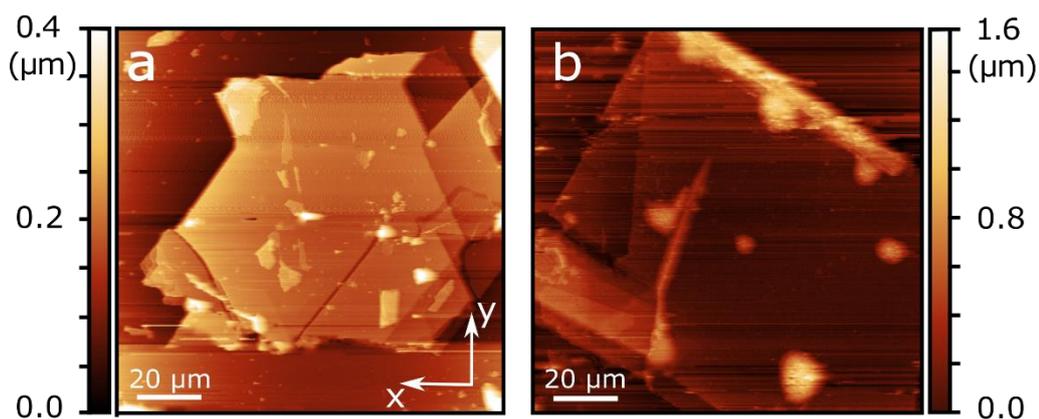


Рисунок 2. Изображения чешуек, полученные с помощью атомной силовой микроскопии (a)  $\text{NiPS}_3$  и (b)  $\text{FePS}_3$ .

Для чешуек также были измерены спектры комбинационного рассеяния. Измерения спектров были выполнены научной группой д.ф.-м.н.

В. Ю. Давыдова (лаб. спектроскопии твердого тела, ФТИ им. А. Ф. Иоффе). Данные были получены с помощью спектрометра LabRAM HR Evolution UV-VIS-NIR (Horiba, Франция), оснащенного конфокальным микроскопом. Спектры были измерены с использованием непрерывного оптического возбуждения на длине волны 532 нм (2.33 эВ) Nd:YAG лазера, мощность падающего на образец излучения не превышала 0.4 мВт. Обработка данных была проведена Е. А. Архиповой, м.н.с. лаб. физики ферроиков ФТИ им. А. Ф. Иоффе.

Для образцов NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub> полученные спектры показаны на Рис. 3 (а) и 3 (b), соответственно, и хорошо согласуются с литературными данными [24,41,43]. Для проверки перехода в антиферромагнитную фазу исследуется температурная зависимость интенсивности и частоты выбранных фононных линий в спектрах. Температура образцов контролировалась с помощью криосистемы Linkam THMS600 (Linkam Scientific Instruments, Великобритания). Поляризованные спектры в NiPS<sub>3</sub> измерялись в параллельной  $[z(yu)\bar{z}]$  и скрещенной  $[z(yx)\bar{z}]$  конфигурациях рассеяния, где ось  $z$  направлена по нормали, а  $x$  и  $y$  лежат в плоскости образца, как показано на Рис. 2 (а). На Рис. 3 (а) показаны спектры для NiPS<sub>3</sub>, полученные при  $T = 80$  К. В парамагнитной фазе NiPS<sub>3</sub> фононный пик P<sub>1</sub> наблюдается на частоте 178.3 см<sup>-1</sup> для обеих поляризаций. В упорядоченном состоянии центральные частоты пика P<sub>1</sub> не совпадают в параллельной и скрещенной поляризациях за счет снятия вырождения фононных мод  $E$ -типа [24]. Разность  $\Delta\omega$  частот P<sub>1</sub> в двух поляризациях как функция температуры  $T$  показана на вставке к Рис. 3 (а). Как и в работе [24] данная температурная зависимость хорошо описывается выражением  $\Delta\omega \propto (T_N - T)^{2\beta}$  с критическим индексом  $\beta = 0.24 \pm 0.04$  и  $T_N = 155 \pm 0.5$  К, что соответствует значению, приведенному для 2D XY-модели ( $\beta = 0.231$  [44]), а также температуре Нееля для объемного материала, соответственно.

Неполяризованный спектр комбинационного рассеяния FePS<sub>3</sub> при  $T = 80$  К показан на Рис. 3 (b). В парамагнитной фазе на частоте 98 см<sup>-1</sup> наблюдается широкий асимметричный фоновый пик [45]. Ниже температуры Нееля появляются два отдельных пика на 87 и 93 см<sup>-1</sup>, что связано с эффектом сложения зоны Бриллюэна («zone folding» – ZF), обусловленным магнитным упорядочением [41]. Интенсивность пика ZF<sub>1</sub> на частоте 87 см<sup>-1</sup> растет при дальнейшем понижении температуры. Как показано на вставке к Рис. 1 (b), интегральная интенсивность  $I$  этого пика становится близкой к нулю при  $T_N \approx 118$  К, что указывает на переход в парамагнитное состояние. Полученное значение хорошо согласуется с имеющимися в литературе данными для FePS<sub>3</sub> для объемного материала [41,45].

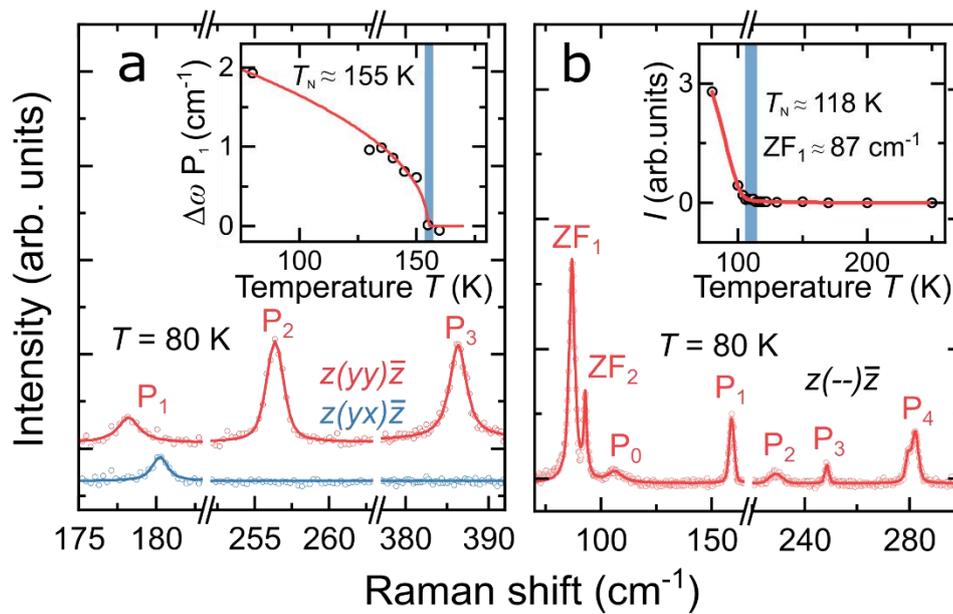


Рисунок 3. Спектры комбинационного рассеяния при  $T = 80$  К, измеренные для чешуек (a) NiPS<sub>3</sub> и (b) FePS<sub>3</sub>. Вставка: (a) зависимость разности центральных частот  $\Delta\omega$  пика P<sub>1</sub> от температуры  $T$  в поляризованных спектрах, измеренных в параллельной  $z(yu)\bar{z}$  и скрещенной  $z(yx)\bar{z}$  поляризациях в чешуйке NiPS<sub>3</sub>, линией показана аппроксимация функцией  $\propto (T_N - T)^{2\beta}$ , (b) зависимость интегральной интенсивности  $I$  пика ZF<sub>1</sub> от температуры  $T$ , линия проведена для наглядности.

## § 2. Методика накачки-зондирования

Эксперимент проводился по методике фемтосекундной двухцветной накачки-зондирования. Схема эксперимента изображена на Рисунке 4. Импульсы зондирования длительностью 170 фс, имеющие энергию фотона  $E_{pr} = 1.2$  эВ, генерировались на частоте повторения 5 кГц с помощью регенеративного усилителя PHAROS (Light Conversion, Литва) на основе кристалла Yb:KGW. В качестве источника импульсов накачки длительностью  $\sigma \approx 170$  фс и энергиями фотона в диапазоне  $E_p = 1.63 \div 1.97$  эВ использовался оптический параметрический усилитель ORPHEUS (Light Conversion, Литва).

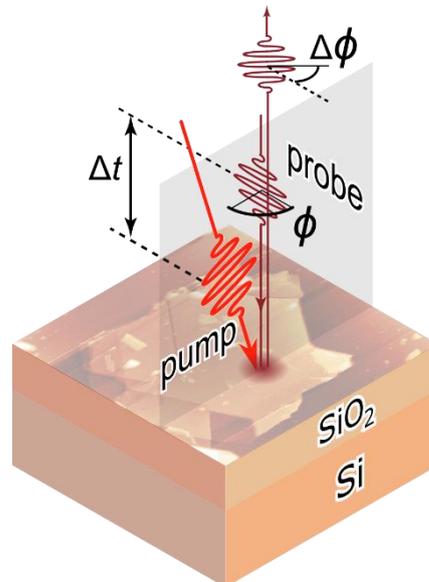


Рисунок 4. Схема эксперимента по методике накачки-зондирования. Серая закрашенная область обозначает плоскость поляризации импульса накачки.  $\phi$  – угол линейной поляризации падающего импульса зондирования,  $\Delta\phi$  – лазерно-индуцированное изменение угла поляризации отраженного импульса зондирования.  $\Delta t$  – время задержки между импульсами накачки и зондирования.

Импульсы накачки имели поверхностную плотность энергии  $F = 2.5$  мДж/см<sup>2</sup> и направлялись на образец под углом падения около 5°. Диаметр пятна импульса накачки на образце составлял около 35 мкм. Импульсы зондирования с поверхностной плотностью энергии 7 мДж/см<sup>2</sup> фокусировались на образце в пятно диаметром 11 мкм и направлялись по

нормали к плоскости образца. Размер обоих пятен на образце был меньше, чем латеральные размеры чешуек, что позволяло сфокусировать лучи в область, не имеющую видимых дефектов. Также не ожидалось существенного влияния от имеющейся у чешуек некоторой неоднородности по толщине на их оптические и магнитные свойства за счет их достаточно большой общей толщины. Кроме того, согласно проведенным нами оценкам, глубина проникновения света для импульсов накачки и зондирования существенно превышала среднюю толщину чешуек. Температура образцов контролировалась в диапазоне  $T = 78 \div 295$  К с помощью криосистемы Linkam HFS600 (Linkam Scientific Instruments, Великобритания). Поворот плоскости поляризации отраженного импульса зондирования  $\Delta\phi$  измерялся как функция времени задержки между импульсами накачки и зондирования  $\Delta t$  с помощью балансного фотодетектора.

В работе [46] было показано, что антиферромагнитное упорядочение в  $\text{FePS}_3$  приводит к возникновению обменного линейного дихроизма, то есть различиям в поглощении падающего в направлении оси  $c$  света, линейно поляризованного вдоль и перпендикулярно зигзагообразным цепочкам магнитных моментов, т. е. вдоль осей  $a$  и  $b$  соответственно. Данный эффект можно рассматривать как анизотропную магнитную рефракцию [47], возникающую вследствие выраженного различия в обменном взаимодействии в направлениях вдоль и перпендикулярно зигзагообразным цепочкам. Как следствие, обменный линейный дихроизм проявляется как поворот плоскости поляризации отраженного света от магнитоупорядоченной среды. Поскольку этот эффект не зависит от ориентации  $L$ , можно ожидать его проявления как в  $\text{FePS}_3$ , так и в  $\text{NiPS}_3$  при условии нормального падения импульса зондирования на образец.

### Глава 3. Лазерно-индуцированная динамика обменного линейного дихроизма в NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub>

#### § 1. Экспериментальные результаты

Было обнаружено, что  $\Delta\phi(\Delta t)$  не зависит от температуры выше  $T_N$  как в NiPS<sub>3</sub>, так и в FePS<sub>3</sub>. Исходя из этого, мы использовали кривые  $\Delta\phi(\Delta t)$ , измеренные при  $T = 173 \text{ K} > T_N$  для обоих соединений в качестве референсных сигналов, объединяющих в себе не зависящий от температуры вклад от лазерно-индуцированного оптического отклика чешуек, подложки, эффектов деформации и тому подобных явлений. Все представленные ниже данные являются результатом вычитания референсной кривой из сигнала при заданной температуре  $T$ , как показано на Рис. 5 (а).

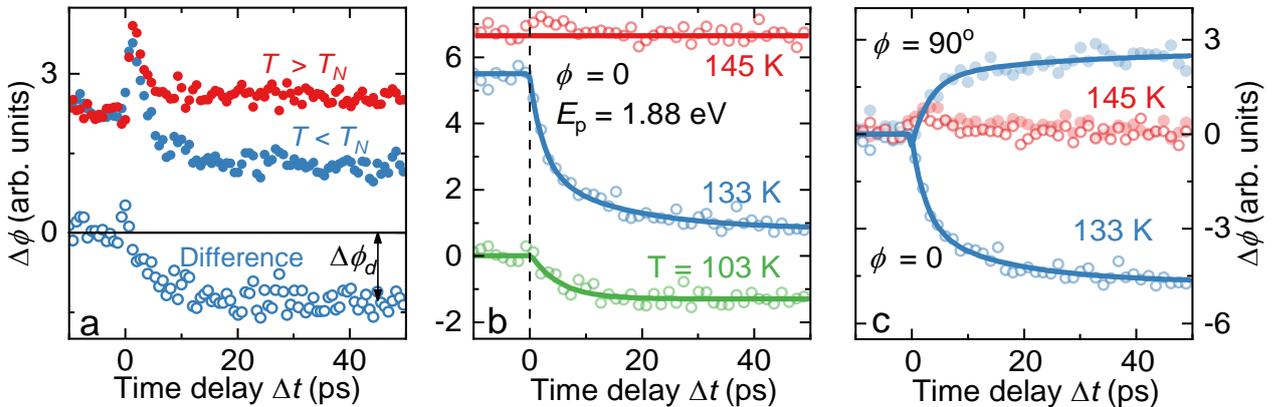


Рисунок 5. Лазерно-индуцированная динамика поворота плоскости поляризации импульса зондирования в NiPS<sub>3</sub>  $\Delta\phi$  как функции задержки между импульсами накачки и зондирования  $\Delta t$  при  $E_p = 1.88 \text{ эВ}$ : (а) пример обработки сигнала  $\Delta\phi(\Delta t)$  с целью уменьшения вклада, не зависящего от температуры, для заданной температуры  $T < T_N$  путем вычитания референсного сигнала при  $T = 173 \text{ K} > T_N$ , а также определение амплитуды изменения обменного линейного дихроизма  $\Delta\phi_d$ ; (б) сравнение временных зависимостей  $\Delta\phi(\Delta t)$  после обработки при различных температурах  $T = 145, 133$  и  $103 \text{ K}$  при поляризации падающего импульса зондирования  $\phi = 0$ ; (в) сравнение зависимостей  $\Delta\phi(\Delta t)$  при температурах  $T = 145 \text{ K} > T_N$  и  $T = 133 \text{ K} < T_N$  при поляризациях импульса зондирования  $\phi = 0$  и  $90^\circ$ . Сплошными линиями обозначена аппроксимация функцией (1).

Динамика лазерно-индуцированного поворота поляризации импульса зондирования  $\Delta\phi$  в чешуйке NiPS<sub>3</sub>, измеренная при различных температурах, показана на Рис. 5 (b). Ниже  $T_N$  наблюдается монотонное изменение  $\Delta\phi$  при  $\Delta t > 0$  с последующим насыщением. Релаксация до исходного состояния происходит на большем временном масштабе, недоступном в нашем эксперименте. Важно заметить, что как амплитуда изменения  $\Delta\phi$ , так и его характерный временной масштаб меняется с температурой, что связывает его происхождение с магнитной динамикой.

Кроме того, как видно на Рис. 5 (c), ниже  $T_N$   $\Delta\phi(\Delta t)$  проявляет выраженную зависимость от угла поляризации падающего импульса зондирования  $\phi$ , а именно, лазерно-индуцированное изменение  $\Delta\phi$  меняет знак при повороте  $\phi$  на 90°. При этом, лазерно-индуцированные изменения  $\Delta\phi$  отсутствуют для любого  $\phi$  при  $T > T_N$ . Указанная зависимость от температуры, а также от поляризации падающего импульса зондирования позволяют предположить, что измеряемый сигнал действительно представляет собой динамику изменений обменного линейного дихроизма, который, в свою очередь отражает динамику лазерно-индуцированных изменений антиферромагнитного порядка в NiPS<sub>3</sub>. Аналогичные измерения были выполнены для чешуйки FePS<sub>3</sub> [Рис. 6 (a, b)] и выявили качественно схожую температурную зависимость  $\Delta\phi(\Delta t)$ , однако по сравнению с NiPS<sub>3</sub> наблюдалось более длительное характерное время временной эволюции лазерно-индуцированного обменного линейного дихроизма.

В обоих исследованных образцах NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub> не было выявлено зависимости  $\Delta\phi(\Delta t)$  от поляризации импульса накачки во всем рассматриваемом диапазоне температур, что указывает на термическую природу наблюдаемой динамики. Учитывая все экспериментальные наблюдения, можно заключить, что как в NiPS<sub>3</sub>, так и в FePS<sub>3</sub> при температурах

ниже  $T_N$  оптическое возбуждение приводит к частичному разрушению антиферромагнитного упорядочения (размагничиванию) за счет нагрева, проявляющееся в изменении величины обменного линейного дихроизма. Отметим, что ранее наблюдалось лазерно-индуцированное размагничивание в FePS<sub>3</sub> [32], однако относительно NiPS<sub>3</sub> об этом процессе на пикосекундном временном масштабе не сообщалось.

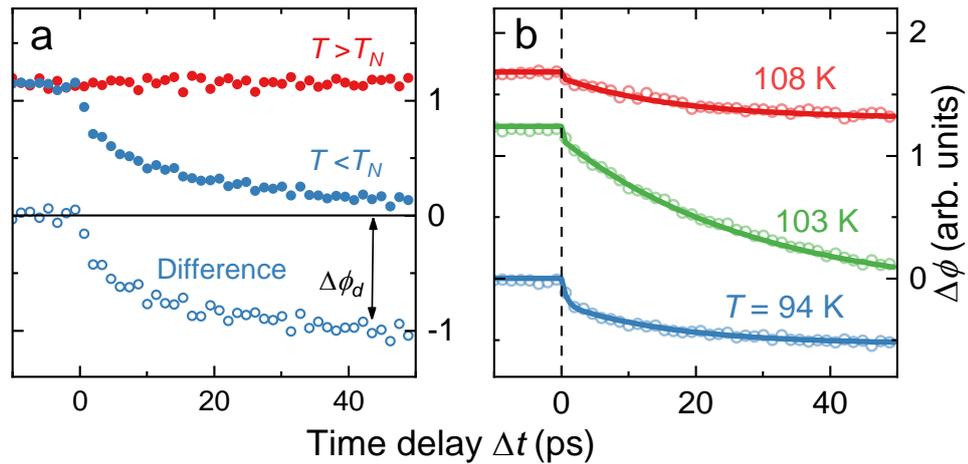


Рисунок 6. Лазерно-индуцированная динамика поворота плоскости поляризации импульса зондирования в FePS<sub>3</sub>  $\Delta\phi(\Delta t)$  при  $E_p = 1.97$  эВ: (a) пример обработки сигнала  $\Delta\phi(\Delta t)$  с целью уменьшения вклада, не зависящего от температуры, для заданной температуры  $T < T_N$  путем вычитания референсного сигнала при  $T = 173$  К  $> T_N$ , а также определение амплитуды изменения обменного линейного дихроизма  $\Delta\phi_d$ ; (b) сравнение временных зависимостей  $\Delta\phi(\Delta t)$  после обработки при различных температурах  $T = 108$ , 103 и 94 К при поляризации падающего импульса зондирования  $\phi = 0$ . Сплошными линиями обозначена аппроксимация функцией (1).

Чтобы количественно оценить степень размагничивания мы использовали значение  $\Delta\phi_d$  при  $\Delta t_d = 45$  пс, которое определялось, как показано на Рис. 5 (a) и 6 (a). При большинстве исследуемых температур на данной временной задержке  $\Delta\phi(\Delta t)$  достигает насыщения как в NiPS<sub>3</sub>, так и в FePS<sub>3</sub>. Так как сверхбыстрое размагничивание индуцируется лазерным нагревом, его амплитуда может быть чувствительна к энергии фотона в импульсе накачки, что обусловлено спектральной зависимостью коэффициента поглощения

материала. В соответствии с этим предположением, нами были выбраны оптимальные энергии фотона в импульсе накачки  $E_p = 1.88$  эВ для NiPS<sub>3</sub> и 1.97 эВ для FePS<sub>3</sub>, при которых наблюдалась наибольшая амплитуда лазерно-индуцированного сигнала.

Для анализа температурной зависимости лазерно-индуцированного изменения обменного линейного дихроизма мы рассмотрели  $\Delta\phi_d(T)$ , а также определили характерные времена путем аппроксимации экспериментальных данных при каждой температуре функцией:

$$\Delta\phi(\Delta t, T) = \sum_{i=1}^2 B_i(T) \left[ e^{-\frac{\Delta t}{\tau_i(T)}} - 1 \right], \quad (1)$$

где  $B_i$  — масштабные коэффициенты, а  $\tau_i$  — характерные времена.

Аппроксимация биэкспоненциальной функцией была обусловлена наличием быстрой ( $\tau_1$ ) и более медленной ( $\tau_2$ ) компонент во временной эволюции  $\Delta\phi$  в FePS<sub>3</sub>, что можно увидеть на Рис. 6 (b). Важно отметить, что время задержки  $\Delta t_d$ , при котором анализируется степень размагничивания, превышает  $3\tau_2$  при большинстве исследованных температур в NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub>.

Как показано на Рис. 7 (a), в NiPS<sub>3</sub>  $\Delta\phi_d$  заметно растет при увеличении температуры, а затем резко уменьшается до нулевого значения, что соответствует ожидаемой температурной зависимости степени размагничивания. Последняя предполагается наибольшей вблизи  $T_N$  [10,11]. Температура, при которой наблюдалось наиболее резкое изменение  $\Delta\phi_d$ , была обозначена как  $T_{N,\text{exp}}$  и оказалась ниже, чем  $T_N$ , определенная из анализа спектров комбинационного рассеяния, приведенного в Гл. 2 § 1. Такая разница объясняется неидеальным тепловым контактом между образцом и холодным пальцем криостата, а также избыточным лазерным подогревом. Значение  $T_{N,\text{exp}}$  обсуждается в § 2 настоящей главы.

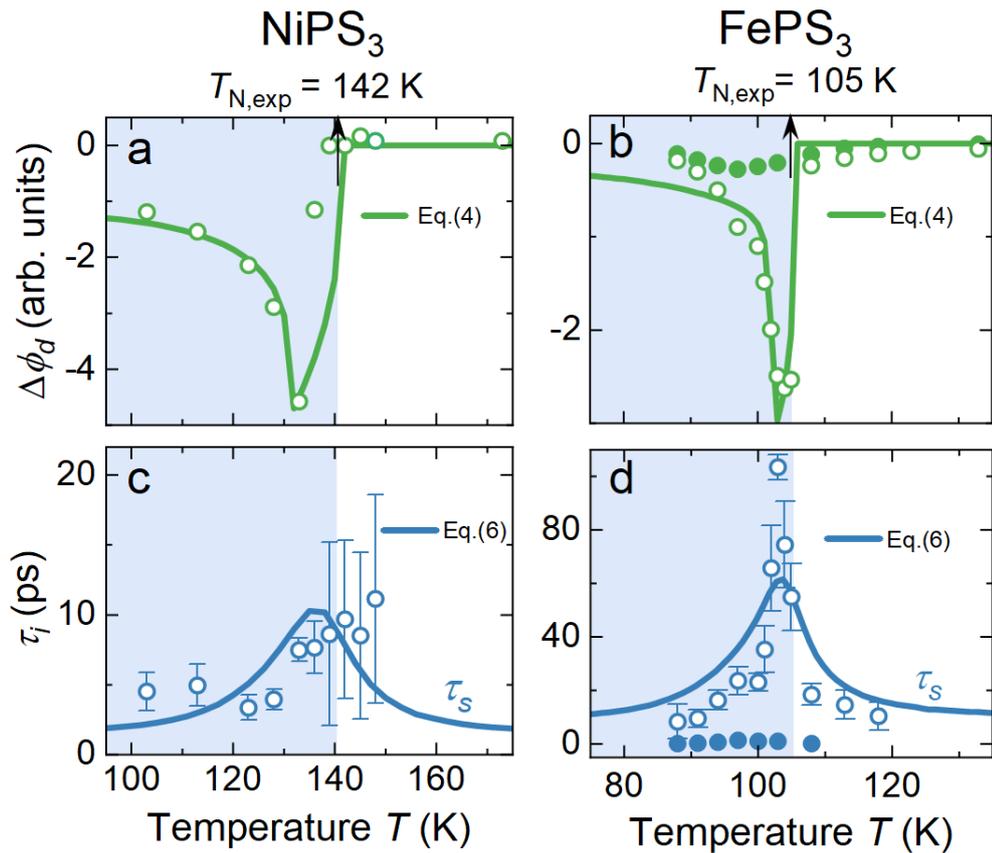


Рисунок 7. Выколотые символы: амплитуда изменения обменного линейного дихроизма  $\Delta\phi_d$  как функция температуры  $T$  при  $\phi = 0$  в (a)  $\text{NiPS}_3$  при фиксированном  $E_p = 1.88$  эВ и (b)  $\text{FePS}_3$  при фиксированном  $E_p = 1.97$  эВ; время размагничивания  $\tau_2$  как функция температуры  $T$  в (c)  $\text{NiPS}_3$  и (d)  $\text{FePS}_3$ . Закрашенные символы: (b) Амплитуда  $\Delta\phi$  ( $\Delta t = 2$  пс) и (d) время  $\tau_1$  как функция температуры  $T$  в  $\text{FePS}_3$  (погрешность в масштабе графика не превышает размеры символов). Сплошными линиями обозначены: (a, b) аппроксимация с помощью выражения (4) и (c, d) аппроксимация с помощью выражений (6) и (7).

В  $\text{NiPS}_3$  при аппроксимации  $\Delta\phi(\Delta t, T)$  функцией (1) было определено значение  $B_l = 0$ . Следовательно,  $\tau_2$  однозначно соответствует характерному времени частичного разрушения антиферромагнитного порядка. Как показано на Рис. 7 (c), в окрестности  $T_{N,\text{exp}}$   $\tau_2$  растет незначительно и в рассматриваемом диапазоне температур не превышает 15 пс.

Аналогичное резкое увеличение  $\Delta\phi_d$  наблюдается в  $\text{FePS}_3$  при приближении к  $T_{N,\text{exp}}$  снизу, за которым следует резкое уменьшение амплитуды

сигнала [рис. 7 (b)]. В отличие от NiPS<sub>3</sub>, аппроксимация  $\Delta\phi(\Delta t, T)$  выражением (1) выявила биэкспоненциальный характер. Температурные зависимости  $\tau_1$  и  $\tau_2$  имеют выраженные отличия, они показаны на Рис. 7 (d). Время  $\tau_2$  заметно возрастает до 100 пс вблизи  $T_{N,exp}$ , и, таким образом, его можно сопоставить с характерным временем размагничивания [32]. В то же время,  $\tau_1 \approx 1,5$  пс и не зависит от  $T$ , а соответствующая ему амплитуда изменения обменного линейного дихроизма  $\Delta\phi(\Delta t = 2$  пс) также слабо меняется с температурой [Рис. 7 (b)]. Данное наблюдение предполагает, что короткая временная компонента в лазерно-индуцированном сигнале в FePS<sub>3</sub> отражает эволюцию оптических свойств материала при сверхбыстром нагреве и не связана с магнитной динамикой. Стоит также отметить, что абсолютная величина поворота поляризации отраженного импульса зондирования, наблюдаемая в эксперименте для FePS<sub>3</sub>, на порядок превышала аналогичную для NiPS<sub>3</sub>. Это предполагает, что невозможность определения  $\tau_1$  для NiPS<sub>3</sub> из экспериментальных данных может быть связана с чувствительностью экспериментальной методики.

## § 2. Численное моделирование критического поведения динамики намагниченности в NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub>

Обменный линейный дихроизм имеет квадратичную зависимость от параметра порядка  $L$  [46,48]. Согласно теории фазовых переходов Ландау [49] параметр порядка вблизи  $T_N$  меняется с температурой по степенному закону:

$$\begin{aligned} L &\propto (T_N - T)^\beta, & T < T_N \\ L &= 0, & T \geq T_N \end{aligned} \quad (2)$$

где  $\beta$  — критический индекс. Он характеризует магнитный фазовый переход и специфичен для модели, описывающей систему. Следовательно, точное выражение для лазерно-индуцированного изменения обменного линейного дихроизма  $\Delta\phi_d$  можно записать как:

$$\Delta\phi_d(T) = D\Delta L^2 = D[(L + \Delta L)^2 - L^2], \quad (3)$$

где  $L \equiv L(T)$  – значение параметра порядка при начальной температуре  $T$ ,  $\Delta L \equiv \Delta L(T)$  – лазерно-индуцированное изменение параметра порядка, а  $D$  — масштабный коэффициент. Учитывая, что наблюдаемый нами эффект связан со сверхбыстрым нагревом, а также температурную зависимость параметра порядка согласно выражению (2), мы можем переписать равенство (3) в следующем виде:

$$\Delta\phi_d(T) = D \left[ \left( (T_N - (T + \Delta T_S(T))) \right)^{2\beta} - (T_N - T)^{2\beta} \right] \quad (4)$$

где  $\Delta T_S(T)$  — лазерно-индуцированное изменение эффективной спиновой температуры. Чтобы явно показать связь между динамикой лазерно-индуцированного нагрева спиновой подсистемы и  $\Delta\phi(T, \Delta t)$ , а также выделить вклад критического поведения, описываемого  $\beta$ , при увеличении эффективной спиновой температуры, введем линейную по  $\Delta L$  аппроксимацию выражения (3):

$$\Delta\phi_d(T) = D[2L\Delta L + (\Delta L)^2] \approx 2DL\Delta L \quad (5)$$

Последнее действительно с учетом предположения об относительно небольших лазерно-индуцированных изменениях  $L$ , т. е. при температурах  $T$  и  $T + \Delta T_S(T)$ , достаточно далеких от  $T_{N, \text{exp}}$ . Тогда выражение (4) сводится к виду:

$$\Delta\phi_d(T) = 2DL \frac{dL}{dT} \Delta T_S(T) = -2D\beta(T_N - T)^{2\beta-1} \Delta T_S(T) \quad (6)$$

Выражение (6) позволяет нам установить соответствие между временем размагничивания  $\tau_2$ , получаемым из экспериментально измеренных кривых  $\Delta\phi(T, \Delta t)$ , и характерным временем нагрева спиновой подсистемы  $\tau_S$ . Изменение же величины  $\Delta\phi_d$  с температурой  $T$  определяется как критическим индексом  $\beta$ , так и изменением эффективной спиновой температуры. Динамику лазерного нагрева спиновой подсистемы позволяет описать двух-

температурная модель [50]. Так как в диэлектрических материалах при сверхбыстром лазерном воздействии энергия и угловой момент передаются в спиновую подсистему из решеточной [51], в расчетах рассматривались только эти два резервуара энергии с соответствующими эффективными температурами  $T_S$  и  $T_P$ .

Система уравнений двух-температурной модели для эффективных температур спинов и решетки с начальным условием  $T_S = T_P = T$  была записана следующим образом:

$$\begin{cases} \frac{\rho}{\mu} C_P(T_P) \frac{dT_P}{dt} = g_{SP}(T_S - T_P) + P(t) \\ \frac{\rho}{\mu} C_S(T_S) \frac{dT_S}{dt} = g_{SP}(T_P - T_S) \end{cases}, \quad (7)$$

где  $C_P$  и  $C_S$  – молярные решеточная и магнитная теплоемкости соответственно, а  $g_{SP}$  обозначает постоянную спин-решеточного взаимодействия. Температурная зависимость решеточной теплоемкости  $C_P(T)$  определялась аппроксимацией экспериментальных данных о полной теплоемкости исследуемых материалов  $C(T)$ , приведенных в работе [42] с помощью функции Дебая [52]. Магнитная теплоемкость, в свою очередь, определялась как  $C_S(T) = C(T) - C_P(T)$ . Символами  $\rho$  и  $\mu$  обозначены плотность и молярная масса, соответственно. Поглощенная плотность мощности лазерного импульса накачки была включена в систему уравнений как  $P(t)$  и рассчитывалась по формуле [53]:

$$P(t) = AF \frac{1 - e^{-\alpha d}}{d} \frac{2\sqrt{\ln 2} e^{-4 \ln 2 \left(\frac{t}{\sigma}\right)^2}}{\sigma\sqrt{\pi}}, \quad (8)$$

где доля прошедшего через границу раздела «воздух- $MPS_3$ » лазерного излучения  $A = 1 - R$  была рассчитана по формуле Френеля с учетом комплексного показателя преломления  $n$ . Доля поглощенной энергии в чешуйке  $MPS_3$  рассчитывалась с показателем поглощения  $\alpha$ . Толщина чешуек

$d$  в расчете была принята равной среднему значению 200 нм. Эффекты интерференции на границах раздела между остальными слоями образцов не учитывались, так как, согласно проведенным нами оценкам, обратное отражение на них не превышало 10% от интенсивности падающего лазерного излучения. Значения параметров расчета, не указанные выше, приведены в Таблице 1.

Параметр, ед. изм.	NiPS <sub>3</sub>	FePS <sub>3</sub>
$\rho$ , кг/м <sup>3</sup>	3200 [54]	2900 [54]
$\mu$ , кг/моль	0.186	0.183
$n$	$3.7 + 0.5i$ [55]	$2.9 + 0.3i$ [56]
$\alpha$ , м <sup>-1</sup>	$3.2 \cdot 10^6$ [57]	$1.2 \cdot 10^6$ [58,59]
$g_{SP}$ , Вт/(м <sup>3</sup> К)	$(3.2 \pm 0.8) \cdot 10^{16}$	$(1.2 \pm 0.4) \cdot 10^{16}$
$\beta$	$0.21 \pm 0.06$	$0.10 \pm 0.03$

Таблица 1. Значения параметров, использованных в численном моделировании критического поведения динамики намагниченности в  $MPS_3$ , а также полученные с помощью аппроксимации экспериментальных данных значения постоянной спин-решеточного взаимодействия  $g_{SP}$  и критического индекса  $\beta$ .

Решение системы уравнений (7) позволило определить как временную зависимость эффективной спиновой температуры  $T_S(T, \Delta t)$ , так и ее изменение относительно начальной температуры  $T$  в момент времени  $\Delta t_d$ , а именно  $\Delta T_S(T)$ . Последнее не превышало 20 К и 10 К соответственно для NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub> во всем диапазоне исследуемых начальных температур, достигая минимума вблизи  $T_{N,exp}$ . Такой результат свидетельствует о применимости линейного приближения (6) при сопоставлении времени размагничивания  $\tau_2$  и характерного времени нагрева спиновой подсистемы  $\tau_S$ . Последнее определялось аппроксимацией решения уравнений (7)  $T_S(T, \Delta t)$  функцией:  $T \left( 1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_S(T)}} \right)$ . Моделирование также учитывало температурную поправку  $T_{N,exp} < T_N$ , и соответствующая разница оказалась равной  $\approx 13$  К для

обеих исследованных чешуек, что обусловило значения  $T_{N,exp} = 142$  К для  $NiPS_3$  и  $T_{N,exp} = 105$  К для  $FePS_3$ .

Так как по своему физическому смыслу  $\tau_s$  является характерным временем установления теплового равновесия между спиновой и решеточной подсистемами, оно связано с постоянной спин-решеточного взаимодействия  $g_{SP}$ , что позволяет нам оценить значение последней из экспериментальных данных. На Рис. 7 (с, d) показано сравнение рассчитанного времени  $\tau_s(T)$  и  $\tau_2$  для  $NiPS_3$  и  $FePS_3$ , соответственно. Разумное согласие с экспериментальной температурной зависимостью времени размагничивания  $\tau_2$  было достигнуто при значениях  $g_{SP}$ , приведенных в Табл. 1.

Следующим шагом стала аппроксимация экспериментальной зависимости  $\Delta\phi_d(T)$  выражением (3) с использованием масштабного коэффициента  $D$  и критического индекса  $\beta$  в качестве параметров [см. сплошные зеленые линии на Рис. 7 (а, b)]. Полученные значения  $\beta = 0.21 \pm 0.06$  для  $NiPS_3$ , что близко к значению 0.231, соответствующему 2D XY-модели [44], а также  $0.24 \pm 0.04$ , полученному из анализа спектров комбинационного рассеяния [см. Гл. 2, § 1 настоящей работы]. Для  $FePS_3$  критический индекс составил  $\beta = 0.10 \pm 0.03$ , что не противоречит теоретическому значению для 2D-модели Изинга ( $\beta = 0.125$  [44]) и достаточно близко к результатам, полученным из данных мёссбауэровской спектроскопии ( $\beta = 0.16 \pm 0.01$  [60]).

Заметим, что в диапазоне  $\approx 10$  К выше  $T_{N,exp}$  все еще определяется ненулевая амплитуда  $\Delta\phi_d$  и время размагничивания  $\tau_2$ , которому соответствует характерное время нагрева спиновой подсистемы  $\tau_s$  [см. Рис. 7 (с, d)]. Наличие этого сигнала может являться следствием наличия ближнего магнитного порядка, который не учитывается в модели, и, следовательно, данная область температур не описывается выражением (4).

Как уже упоминалось выше, характерное время размагничивания связано с постоянной спин-решеточного взаимодействия  $g_{SP}$ . Так, оно связано

с ней соотношением  $\tau_2 = \tau_s = C_S/g_{SP}$ , что устанавливает также соответствие между  $\tau_2(T)$  и особенностями температурной зависимости магнитной теплоемкости  $C_S(T)$ . Незначительное в сравнении с FePS<sub>3</sub> замедление лазерно-индуцированной магнитной динамики в NiPS<sub>3</sub> коррелирует с особенностями магнитной теплоемкости в этих материалах [25,42,61]. В то время как у NiPS<sub>3</sub>  $C_S(T)$  не обладает ярко выраженными особенностями в области  $T_N$ , магнитная теплоемкость FePS<sub>3</sub> имеет отчетливый лямбда-пик вблизи температуры перехода.

В свою очередь, полученные нами значения постоянной спин-решеточного взаимодействия  $g_{SP}$  в NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub> имеют одинаковый порядок величины. Это, в частности, связано с сопоставимыми временами размагничивания, не превышающими 10 пс в обоих соединениях при температурах вдали от  $T_{N,exp}$ . В работе [32] сообщалось о значениях времен размагничивания FePS<sub>3</sub>, близких к упомянутому, в пределе объемного материала. Относительно двух других соединений семейства MPS<sub>3</sub>, MnPS<sub>3</sub> и CoPS<sub>3</sub>, сообщалось о временах размагничивания около 30 пс [62] и 2 пс [30], соответственно. Если объединить эти данные с полученными нами значениями, то время размагничивания вдали от критической области среди представителей MPS<sub>3</sub> убывает в ряду Mn–Fe, Ni–Co. Отметим, что данная тенденция не коррелирует со значениями температуры Нееля в этом ряду, поскольку NiPS<sub>3</sub> имеет наибольшую  $T_N$ , температуры Нееля у FePS<sub>3</sub> и CoPS<sub>3</sub> [63] очень близки, а для MnPS<sub>3</sub> составляет всего 78 К [38]. Также нет прямой связи с величинами магнитных моментов в этих соединениях [38], в отличие от размагничивания в металлах [9]. Можно предположить, что в MPS<sub>3</sub> именно степень размораживания углового момента, наиболее выраженного в CoPS<sub>3</sub> и отсутствующего в MnPS<sub>3</sub>, оказывает существенное влияние на спин-фононное взаимодействие, и, следовательно, динамику размагничивания.

## Заключение

Нами проведено сравнительное экспериментальное исследование лазерно-индуцированной динамики обменного линейного дихроизма в квазидвумерных зигзагообразных антиферромагнетиках  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$ . Критическое поведение их магнитных свойств описывается соответственно 2D  $XU$ -моделью и 2D моделью Изинга. Было показано, что процесс сверхбыстрого размагничивания в этих соединениях хорошо объясняется в терминах лазерно-индуцированного эффективного нагрева спиновой подсистемы посредством спин-решеточного взаимодействия. Степень размагничивания в  $\text{NiPS}_3$  и  $\text{FePS}_3$  проявляет критическое поведение в окрестности температуры Нееля с индексами, хорошо согласующимися со значениями, специфичными для 2D  $XU$ -модели и 2D модели Изинга, соответственно.

Постоянные спин-решеточного взаимодействия оказались близки для двух исследуемых соединений, как и времена размагничивания вдали от  $T_N$ , которые составили около 10 пс. Ранее в литературе сообщалось о характерных временах размагничивания для всех представителей семейства  $MPS_3$ , кроме  $\text{NiPS}_3$ . Полученный в рамках настоящей работы результат дополняет имеющиеся в литературе данные и позволяет выстроить в ряд соединения  $MPS_3$  по признаку убывания характерного времени размагничивания в следующем порядке магнитных ионов:  $\text{Mn-Fe}$ ,  $\text{Ni-Co}$ . Это наблюдение позволяет предположить, что степень разморозки углового момента играет важную роль в динамике сверхбыстрого размагничивания в  $MPS_3$ . Также обнаружены различия в критическом поведении динамики намагниченности, которые, в соответствии с тепловой природой лазерно-индуцированного размагничивания, обусловлены различиями в температурной зависимости магнитной теплоемкости в окрестности  $T_N$ .

**СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ**

1. Stanciu C.D. et al. All-optical magnetic recording with circularly polarized light // *Physical Review Letters*. 2007. Vol. 99, № 4. P. 047601.
2. Ostler T.A. et al. Ultrafast heating as a sufficient stimulus for magnetization reversal in a ferrimagnet // *Nature Communications*. 2012. Vol. 3, № 1. P. 666.
3. Medapalli R. et al. Multiscale dynamics of helicity-dependent all-optical magnetization reversal in ferromagnetic Co/Pt multilayers // *Physical Review B*. 2017. Vol. 96, № 22. P. 224421.
4. Huisman T.J. et al. Femtosecond control of electric currents in metallic ferromagnetic heterostructures // *Nature Nanotechnology*. 2016. Vol. 11, № 5. P. 455–458.
5. Seifert T. et al. Efficient metallic spintronic emitters of ultrabroadband terahertz radiation // *Nature Photonics*. 2016. Vol. 10, № 7. P. 483–488.
6. Beaurepaire E. et al. Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel // *Physical Review Letters*. 1996. Vol. 76, № 22. P. 4250–4253.
7. Stamm C. et al. Femtosecond modification of electron localization and transfer of angular momentum in nickel // *Nature Materials*. 2007. Vol. 6, № 10. P. 740–743.
8. Carpene E. et al. Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron films // *Physical Review B*. 2008. Vol. 78, № 17. P. 174422.
9. Koopmans B. et al. Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization // *Nature Materials*. 2010. Vol. 9, № 3. P. 259–265.
10. Kimel A.V. et al. Ultrafast Quenching of the Antiferromagnetic Order in  $\text{FeBO}_3$ : Direct Optical Probing of the Phonon-Magnon Coupling // *Phys. Rev. Lett.* 2002. Vol. 89, № 28. P. 287401.
11. Maehrlein S.F. et al. Dissecting spin-phonon equilibration in ferrimagnetic insulators by ultrafast lattice excitation // *Sci. Adv.* 2018. Vol. 4, № 7. P. eaar5164.
12. López-Flores V. et al. Role of critical spin fluctuations in ultrafast demagnetization of transition-metal rare-earth alloys // *Phys. Rev. B*. 2013. Vol. 87, № 21. P. 214412.
13. Kimling J. et al. Ultrafast demagnetization of FePt:Cu thin films and the role of magnetic heat capacity // *Phys. Rev. B*. 2014. Vol. 90, № 22. P. 224408.
14. Susner M.A. et al. Metal Thio- and Selenophosphates as Multifunctional van der Waals Layered Materials // *Advanced Materials*. 2017. Vol. 29, № 38. P. 1602852.
15. Wang F. et al. New Frontiers on van der Waals Layered Metal Phosphorous Trichalcogenides // *Advanced Functional Materials*. 2018. Vol. 28, № 37. P. 1802151.

16. Bellitto C., Bauer E.M., Righini G. Organic–inorganic hybrids: From magnetic perovskite metal(II) halides to multifunctional metal(II) phosphonates // *Coordination Chemistry Reviews*. 2015. Vol. 289–290, № 1. P. 123–136.
17. Ingason A.S., Dahlqvist M., Rosen J. Magnetic MAX phases from theory and experiments; a review // *Journal of Physics: Condensed Matter*. 2016. Vol. 28, № 43. P. 433003.
18. Jenkins S. et al. Breaking through the Mermin-Wagner limit in 2D van der Waals magnets // *Nat Commun*. 2022. Vol. 13, № 1. P. 6917.
19. Kuo C.-T. et al. Exfoliation and Raman Spectroscopic Fingerprint of Few-Layer NiPS<sub>3</sub> Van der Waals Crystals // *Scientific Reports*. 2016. Vol. 6, № 1. P. 20904.
20. Xu M. et al. Graphene-Like Two-Dimensional Materials // *Chemical Reviews*. 2013. Vol. 113, № 5. P. 3766–3798.
21. Mas-Ballesté R. et al. 2D materials: to graphene and beyond // *Nanoscale*. 2011. Vol. 3, № 1. P. 20–30.
22. Butler S.Z. et al. Progress, Challenges, and Opportunities in Two-Dimensional Materials Beyond Graphene // *ACS Nano*. 2013. Vol. 7, № 4. P. 2898–2926.
23. Huang B. et al. Layer-dependent ferromagnetism in a van der Waals crystal down to the monolayer limit // *Nature*. 2017. Vol. 546, № 7657. P. 270–273.
24. Kim K. et al. Suppression of magnetic ordering in XXZ-type antiferromagnetic monolayer NiPS<sub>3</sub> // *Nature Communications*. 2019. Vol. 10, № 1. P. 345.
25. Kim T.Y., Park C.-H. Magnetic Anisotropy and Magnetic Ordering of Transition-Metal Phosphorus Trisulfides // *Nano Letters*. 2021. Vol. 21, № 23. P. 10114–10121.
26. Caretta A. et al. Photoinduced magnetization enhancement in two-dimensional weakly anisotropic Heisenberg magnets // *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*. 2015. Vol. 91, № 2. P. 020405.
27. Afanasiev D. et al. Controlling the anisotropy of a van der Waals antiferromagnet with light // *Science Advances*. 2021. Vol. 7, № 23. P. eabf3096.
28. Mertens F. et al. Ultrafast Coherent THz Lattice Dynamics Coupled to Spins in the van der Waals Antiferromagnet FePS<sub>3</sub> // *Advanced Materials*. 2022. Vol. 35, № 6. P. 2208355.
29. Zhou F. et al. Dynamical criticality of spin-shear coupling in van der Waals antiferromagnets // *Nature Communications*. 2022. Vol. 13, № 1. P. 6598.
30. Khusyainov D. et al. Ultrafast laser-induced spin–lattice dynamics in the van der Waals antiferromagnet CoPS<sub>3</sub> // *APL Materials*. 2023. Vol. 11, № 7. P. 071104.
31. Lichtenberg T. et al. Anisotropic laser-pulse-induced magnetization dynamics in van der Waals magnet Fe<sub>3</sub>GeTe<sub>2</sub> // *2D Materials*. 2023. Vol. 10, № 1. P. 015008.
32. Zhang X.-X. et al. Spin Dynamics Slowdown near the Antiferromagnetic Critical Point in Atomically Thin FePS<sub>3</sub> // *Nano Letters*. 2021. Vol. 21, № 12. P. 5045–5052.
33. Chu J. et al. High-Performance Ultraviolet Photodetector Based on a Few-Layered 2D NiPS<sub>3</sub> Nanosheet // *Advanced Functional Materials*. 2017. Vol. 27, № 32. P. 1701342.

34. Wang M. et al. Prospects and Opportunities of 2D van der Waals Magnetic Systems // *Annalen der Physik*. 2020. Vol. 532, № 5. P. 1900452.
35. Geim A.K., Grigorieva I.V. Van der Waals heterostructures // *Nature*. 2013. Vol. 499, № 7459. P. 419–425.
36. Wolf S.A. et al. Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future // *Science*. 2001. Vol. 294, № 5546. P. 1488–1495.
37. Ouvrard G., Brec R., Rouxel J. Structural determination of some  $MPS_3$  layered phases ( $M = Mn, Fe, Co, Ni$  and  $Cd$ ) // *Materials Research Bulletin*. 1985. Vol. 20, № 10. P. 1181–1189.
38. Joy P.A., Vasudevan S. Magnetism in the layered transition-metal thiophosphates  $MPS_3$  ( $M = Mn, Fe, \text{ and } Ni$ ) // *Phys. Rev. B*. 1992. Vol. 46, № 9. P. 5425–5433.
39. Wildes A.R. et al. Magnetic structure of the quasi-two-dimensional antiferromagnet  $NiPS_3$  // *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*. 2015. Vol. 92, № 22. P. 224408.
40. Kim D.S. et al. Anisotropic Excitons Reveal Local Spin Chain Directions in a van der Waals Antiferromagnet // *Advanced Materials*. 2023. Vol. 35, № 19. P. 2206585.
41. Lee J.-U. et al. Ising-Type Magnetic Ordering in Atomically Thin  $FePS_3$  // *Nano Letters*. 2016. Vol. 16, № 12. P. 7433–7438.
42. Šiškins M. et al. Magnetic and electronic phase transitions probed by nanomechanical resonators // *Nature Communications*. 2020. Vol. 11, № 1. P. 2698.
43. Liu S. et al. Direct Observation of Magnon-Phonon Strong Coupling in Two-Dimensional Antiferromagnet at High Magnetic Fields // *Physical Review Letters*. 2021. Vol. 127, № 9. P. 097401.
44. Vaz C.A.F., Bland J.A.C., Lauhoff G. Magnetism in ultrathin film structures // *Reports on Progress in Physics*. 2008. Vol. 71, № 5. P. 056501.
45. Wang X. et al. Raman spectroscopy of atomically thin two-dimensional magnetic iron phosphorus trisulfide ( $FePS_3$ ) crystals // *2D Materials*. 2016. Vol. 3, № 3. P. 031009.
46. Zhang Q. et al. Observation of Giant Optical Linear Dichroism in a Zigzag Antiferromagnet  $FePS_3$  // *Nano Lett.* 2021. Vol. 21, № 16. P. 6938–6945.
47. P.A. Markovin, R.V. Pisarev. Magnetic, thermal, and elastic refraction of light in the antiferromagnet  $MnF_2$  // *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 1979. Vol. 77, № 6. P. 2461 [Sov. Phys. JETP, Vol. 50, No. 6, 1190 (1979)].
48. Demokritov S.O., Kreines N.M., Kudinov V.I. Inelastic scattering of light in the antiferromagnet  $EuTe$  // *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 1987. Vol. 92, № 2. P. 689-703 [Sov. Phys. JETP, Vol. 65, No. 2, P. 389-396 (1987)].
49. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Статистическая физика. Ч. I. 5-е изд., стереот. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2002. Т. V. 616 с.
50. Anisimov S.I., Kapeliovich B.L., Perelman T.L. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses // *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 1974. Vol. 66, № 2. P. 776-781 [Sov. Phys. JETP, Vol. 39, No. 2, P. 375-377 (1974)].

51. Kirilyuk A., Kimel A.V., Rasing T. Ultrafast optical manipulation of magnetic order // *Reviews of Modern Physics*. 2010. Vol. 82, № 3. P. 2731–2784.
52. Debye P. Zur Theorie der spezifischen Wärmen // *Ann. Phys.* 1912. Vol. 344, № 14. P. 789–839.
53. Walowski J. Physics of laser heated ferromagnets: Ultrafast demagnetization and magneto-Seebeck effect: PhD Thesis. Georg-August-University Göttingen, 2012.
54. Jain A. et al. Commentary: The Materials Project: A materials genome approach to accelerating materials innovation // *APL Materials*. 2013. Vol. 1, № 1. P. 011002.
55. Piacentini M. et al. Optical transitions, XPS, electronic states in NiPS<sub>3</sub> // *Chemical Physics*. 1982. Vol. 65, № 3. P. 289–304.
56. Zhang H. et al. Cavity-enhanced linear dichroism in a van der Waals antiferromagnet // *Nature Photonics*. 2022. Vol. 16, № 4. P. 311–317.
57. Belvin C.A. et al. Exciton-driven antiferromagnetic metal in a correlated van der Waals insulator // *Nature Communications*. 2021. Vol. 12, № 1. P. 4837.
58. Brec R. et al. Physical properties of lithium intercalation compounds of the layered transition-metal chalcogenophosphites // *Inorg. Chem.* 1979. Vol. 18, № 7. P. 1814–1818.
59. Budniak A.K. et al. Spectroscopy and Structural Investigation of Iron Phosphorus Trisulfide - FePS<sub>3</sub> // *Advanced Optical Materials*. John Wiley and Sons Inc, 2022. Vol. 10, № 7. P. 2102489.
60. Yao-Dong D. et al. A Mössbauer study of the magnetic coupling in iron phosphorous trisulfides // *Chinese Physics*. 2004. Vol. 13, № 10. P. 1652–1656.
61. Takano Y. et al. Magnetic properties and specific heat of MPS<sub>3</sub> (M=Mn, Fe, Zn) // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. 2004. Vol. 272–276. P. E593–E595.
62. Matthiesen M. et al. Controlling Magnetism with Light in a Zero Orbital Angular Momentum Antiferromagnet // *Phys. Rev. Lett.* 2023. Vol. 130, № 7. P. 076702.
63. Wildes A.R. et al. The magnetic properties and structure of the quasi-two-dimensional antiferromagnet CoPS<sub>3</sub> // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2017. Vol. 29, № 45. P. 455801.

## Список публикаций автора по теме научного доклада

1. Kuntu D.V., Arkhipova E.A., Shelukhin L.A., Mertens F., Prosnikov M.A., Eliseyev I.A., Smirnov A.N., Davydov V.Yu., Mañas-Valero S., Coronado E., Cinchetti M., Kalashnikova A.M. Laser-induced demagnetization in van der Waals XY - and Ising-like antiferromagnets NiPS<sub>3</sub> and FePS<sub>3</sub>//Physical Review Materials, 2024, Vol. 8, No. 1, P. 014408.
2. Kuntu D.V., Arkhipova E.A., Shelukhin L.A., Kalashnikova A.M. Ultrafast laser-induced spin dynamics in van der Waals 2D antiferromagnets NiPS<sub>3</sub> and FePS<sub>3</sub>//Book of abstracts. Trends in MAGnetism 2023– Rome, Italy, 2023. – P. 125.
3. Кунту Д.В., Архипова Е.А., Шелухин Л.А., Mertens F., Просников М.А., Елисеев И.А., Смирнов А.Н., Давыдов В.Ю., Mañas-Valero S., Coronado E., Cinchetti M., Калашникова А.М. Особенности сверхбыстрого лазерно-индуцированного размагничивания в ван-дер-ваальсовых антиферромагнетиках NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub>//Программа и аннотации докладов ЗАСЕДАНИЕ секции “Магнетизм” Научного совета РАН по физике конденсированных сред– Москва: ИФП РАН, 2023. – С. 11-12.
4. Архипова Е.А., Кунту Д.В., Coronado E., Mañas-Valero S., Voix-Constant C., Калашникова А.М. Лазерно-индуцированная спиновая динамика в тонких слоях ван-дер-ваальсовых антиферромагнетиков FePS<sub>3</sub> и NiPS<sub>3</sub>//Сборник трудов. Секция 8. Магнетика и спинтроника. XXXIII Всероссийская школа-семинар «Волновые явления: физика и применения» имени А.П. Сухорукова («Волны-2022»)/ ред. к.ф.-м.н. Калиш А. Н.– Москва: МГУ им. М. В. Ломоносова, 2022. – С. 35-36.
5. Arkhipova E.A., Kuntu D.V., Kalashnikova A.M. Ultrafast laser-induced dynamics of magneto-optical response in thin flakes of van der Waals antiferromagnets NiPS<sub>3</sub> and FePS<sub>3</sub>//Book of abstracts VI International Conference on Ultrafast Optical Science “UltrafastLight-2022”– Lebedev Physical Institute, Moscow: LCC “SAM Polygraphist”, 2022. – P. 52.
6. Arkhipova E., Kuntu D., Shelukhin L., Kalashnikova A. Features of laser-induced demagnetization in van der Waals antiferromagnets FePS<sub>3</sub> and NiPS<sub>3</sub>//Book of abstracts Smart Composites International School 2023 (SCIS-2023). – Svetlogorsk, Russia, 2023. – P. 30.
7. Архипова Е.А., Кунту Д.В., Coronado E., Mañas-Valero S., Voix-Constant C., Калашникова А.М. Лазерно-индуцированная спиновая динамика в тонких слоях ван-дер-ваальсовых антиферромагнетиков NiPS<sub>3</sub> и FePS<sub>3</sub>//Тезисы докладов международной конференции Физика.СПб – СПб.: ПОЛИТЕХ-ПРЕСС, 2022. – С. 178-179.