arXiv:2304.03666v1 [physics.app-ph] 7 Apr 2023

采用无触发异步光学采样的双色双梳系统，用于超快磁化强度动力学的时间分辨测量

D. Nishikawa，[1] K. Maezawa，[1] S. Fujii，[1] M. Okano，[2] 以及 S. Watanabe[1]1)庆应义塾大学理工学部物理系，日本神奈川县横滨市港北区日吉3-14-1，邮编223-85222)防卫大学校，日本神奈川县横须贺市走水1-10-20，邮编239-8686(*watanabe@phys.keio.ac.jp)

（日期：2023年4月10日）

我们报道了一种基于掺铒光纤（EDF）激光器的双梳系统，该系统能够对磁性材料中的超快退磁和自旋进动进行无触发异步光学采样（异步光学采样）泵浦-探测测量。由于两个频率梳光源的振荡频率高度稳定，脉冲到脉冲的定时抖动得到了充分抑制，因此无需任何触发信号即可进行数据累积。为了有效激发铁磁薄膜中的自旋进动，其中一个掺铒光纤激光器频率梳光源的输出光谱带宽先通过高非线性光纤展宽，然后由掺镱光纤放大器在约1030纳米的波长处进行放大。另一个频率梳光源的输出则通过二次谐波产生转换为约775纳米。我们利用该系统观测了坡莫合金薄膜中皮秒和纳秒时间尺度上的超快退磁及自旋进动动力学。这一时域光谱学系统有望实现对磁性材料中自旋波产生与传播动力学的快速表征。

一、引言

使我们能够在磁性材料中诱导并控制自旋进动的技术对于自旋电子学[1–3]至关重要。例如，局部自旋进动可用于诱导磁存储器件中的磁化反转，因此，开发能够快速诱导局部自旋进动的方法对于未来的高速磁存储器件[4–10]非常重要。此外，自旋波是以自旋进动形式传播的扰动，人们已围绕将其作为低功耗的下一代信息载体[11–13]开展了深入研究。为了实现这些与自旋进动和自旋波相关的应用，阐明磁性材料的基本性质，并建立一种能够高精度定量评估自旋动力学的方法非常重要。在各种可能的评估方法中，光学测量具有多项优势，因为通过聚焦光束可以轻易诱导局部自旋进动，并且可以利用脉冲激光器进行时间分辨测量。因此，随着超短光脉冲激光技术的发展，光自旋电子学领域取得了显著进展[14,15]。在过去30年中，人们利用光泵浦-光探测技术开展了许多关于激光诱导磁化动力学的实验（包括超快退磁[16–18]及相关自旋进动[19–22]的时间分辨测量）。此外，研究表明，双脉冲激发方案可用于控制自旋进动振幅[23–27]，并选择性地激发高阶自旋进动[28]。此外，通过在样品[29–31]上扫描光束斑点，已经实现了传播自旋波的空间成像。为了加速相关研究，亟需一种能够快速且精确地探测光学诱导自旋进动时间演化的方法。典型的自旋进动周期处于1皮秒至1纳秒[14]，范围内，而超快退磁后的自旋进动衰减时间约为数纳秒[16,20]。因此，为了全面理解自旋进动动力学，构建一个兼具高时间分辨率和长探测时间的快速测量系统至关重要，其时间范围应覆盖从皮秒到纳秒。

在传统的光学泵浦-探测装置中，由于探测脉冲与泵浦脉冲之间的延迟时间由置于光路中的光学延迟台控制，因此测量一条时间轨迹需要相对较长的时间。为克服这一缺点，人们提出了异步光学采样（异步光学采样）方法，该方法无需机械延迟台[32–44]。由于重复频率不同，两者之间的时间间隔

探测脉冲和泵浦脉冲是时间的（周期性）函数。后续探测脉冲检测泵浦脉冲照射后不同时刻的样品状态（例如磁化强度的瞬时方向）。当探测脉冲与泵浦脉冲之间的时间间隔等于泵浦脉冲周期时，有效延迟时间被重置为零，并重复上述扫描过程。通过这种方式，探测脉冲的延迟会自动产生，而时间分辨率由两种脉冲序列的重复频率决定。因此，时间分辨测量的采集时间可以显著缩短，从而使我们能够通过累积信号大幅提高信噪比[35]。

异步光学采样方法已用于各种材料的时间分辨测量，也已应用于太赫兹时域光谱学[34,38,43,44]和超声测量[36,40]。已有报道使用异步光学采样研究光学诱导的磁化进动[41]。然而，尽管异步光学采样系统能够自动产生上述延迟，通常仍需要电子触发信号来确定每个时间轮廓的时间原点，以便累积数据并提高信噪比（在两列脉冲序列的重复频率未完全稳定的情况下，需要该触发信号，因为这会导致发射时刻发生波动）。触发信号有限的时间分辨率可能导致定时抖动，进而造成平均时间分辨波形的信号强度降低[42]。为减少定时抖动，采用完全频率稳定的双梳光源被认为是一种良好方案。最近，Asahara等人报道了一种双梳系统，用于基于异步光学采样表征砷化铟量子点中的载流子寿命，并展示了可实现具有高稳定性和极宽时间动态范围的时间分辨泵浦–探测测量[42]。我们使用双梳系统进行了基于异步光学采样的太赫兹时域光谱学测量，并证明无需触发即可在48分钟内累积数据，同时不会发生信号劣化[43]。这些研究得益于采用掺铒光纤（EDF）激光系统实现完全频率稳定的频率梳领域的发展[45]。然而，要将基于EDF激光器的超快自旋进动表征应用于更广泛的材料，还需要进一步改进。首先，需要进行向更短波长的波长转换，以便将泵浦脉冲和探测脉冲紧密聚焦在样品表面，从而提高激发密度并改善成像应用中的空间分辨率。其次，泵浦光束和探测光束的波长应有所不同，以便通过波长滤光片将二者分离。最后，可能需要显著提高泵浦功率，以强烈激发样品（典型的

掺铒光纤激光器系统的输出功率为 ~100 mW）。为了获得更短波长，频率梳之一的二次谐- 波产生（SHG）应该是一个很好的解决方案，但对于另一个频率梳，则需要采用另一种转换机制，以满足上述三个要求。2017年，Liu等人提出了一种以光谱展宽的基于掺铒光纤激光器的频率梳系统作为种子光源的掺镱光纤放大器[46,47]。他们在 ~1030 nm的波长下实现了高达356mW的输出功率。使用这种光源应能使我们满足上述三个要求。

在本文中，我们报道了一种双色基于掺铒光纤激光器的双频率梳系统，用于对磁性材料中的超快退磁和自旋进动进行光学泵浦-探测测量。泵浦脉冲所用掺铒光纤激光器频率梳光源的波长通过掺镱光纤放大器转换为约1030纳米，经光栅对进行脉冲压缩后，泵浦脉冲的时间宽度为 ~0.2 ps，泵浦功率为15 mW，足以诱导自旋进动。探测脉冲所用频率梳光源的波长通过二次谐波产生转换为约775纳米。通过使用该双色频率梳系统进行光学泵浦-探测测量，我们观测到了坡莫合金薄膜样品中的超快退磁及由此产生的自旋进动。我们表明，实验确定的进动频率对外部磁场的依赖关系与理论预测高度一致。该异步光学采样系统的测量速度远快于使用机械延迟台的传统装置，因此，我们的方法有望对超快磁化动力学研究非常有用。

II. 系统组件

A. 具有超高精度频率稳定性的频率梳光源 n

图1展示了我们异步光学采样系统所用双梳光源的示意图。为紧密稳定泵浦光梳和探测频率梳的重复频率，我们在光学频率范围内紧密锁定两把频率梳的所有独立频率分量。我们采用了 Fukuda等人[48]报道的相同频率稳定方法。首先，通过 f –2 f 自参考干涉仪[49,50]检测探测频率梳和泵浦光梳的载波包络偏移频率，分别记为 f_{ceo1} 和 f_{ceo2}，并将其锁定到来自两个函数发生器（WF1968 和 WF1974，NF 的射频参考信号。

通过模拟比例积分控制电路，对两台泵浦激光二极管（LD）（1999CB 和 1999CHB, 3SP Technologies）的电流进行反馈控制（Corp.）。其次，探测频率梳的重复频率 f_{rep1} 也锁定至射频参考信号。光纤长度通过压电陶瓷（PZT）元件以及热电冷却器（TEC）（TEC1-12708）调节环境温度来控制，后者也会改变折射率[51,52]。因此，探测频率梳的所有光学频率分量相对于射频信号均保持稳定，并满足关系 $f_{probe}(n) = f_{ceo1} + n \cdot f_{rep1}$，其中 n 为整数。最后，对于每个频率梳，我们需要稳定其中一条梳齿与连续波窄带外腔激光器（ECL）（Redfern Integrated Optics，PLANEX）之间的光学拍频。该激光器的波长为 1550.11 nm，线宽为 1.6 kHz（探测频率梳和泵浦光梳对应的拍频分别记为 f_{beat1} 和 f_{beat2}）[48]。ECL 的频率 f_{cw} 通过反馈控制 ECL 电流，将 f_{beat1} 锁定至射频参考信号来稳定，以满足关系 $f_{cw} = f_{probe}(n_{cw1}) + f_{beat1}$，其中 $f_{probe}(n_{cw1})$ 是与 f_{cw} 相邻的探测频率梳频率分量，n_{cw1} 是对应的整数。随后，通过控制施加在腔内电光相位调制器（EOM）和压电陶瓷元件上的电压，将泵浦光梳的一条光学频率稳定至 f_{beat2}。泵浦光梳的重复频率 f_{rep2} 通过关系 $f_{cw} = f_{ceo2} + n_{cw2} \cdot f_{rep2} + f_{beat2}$ 间接确定，其中 n_{cw2} 是另一个特定整数。我们采用由全球定位系统（GPS）控制、相对不确定度约为 10^{-12} 的铷钟作为主时钟，为函数发生器提供参考信号。因此，两组频率梳的所有光学相位均实现同步，构成完全稳定的双梳系统。

在本研究中，我们将 f_{beat2} 设为一个能产生

$$f_{rep2} = \frac{N+1}{N} f_{rep1}, \tag{1}$$

其中，N 是一个整数，表示异步光学采样系统单次扫描的数据点数。若将 Δf_{rep} 定义为两个频率梳的重复频率之差，即 $f_{rep2} - f_{rep1}$，则 N 可表示为

$$N = \frac{f_{rep1}}{\Delta f_{rep}}. \tag{2}$$

关于测量的时间域描述，我们需要考虑每个探测脉冲相对于紧邻其前到达样品的泵浦脉冲的延迟时间：后续探测脉冲梳的延迟时间以 τ_{step} =为步长增加。

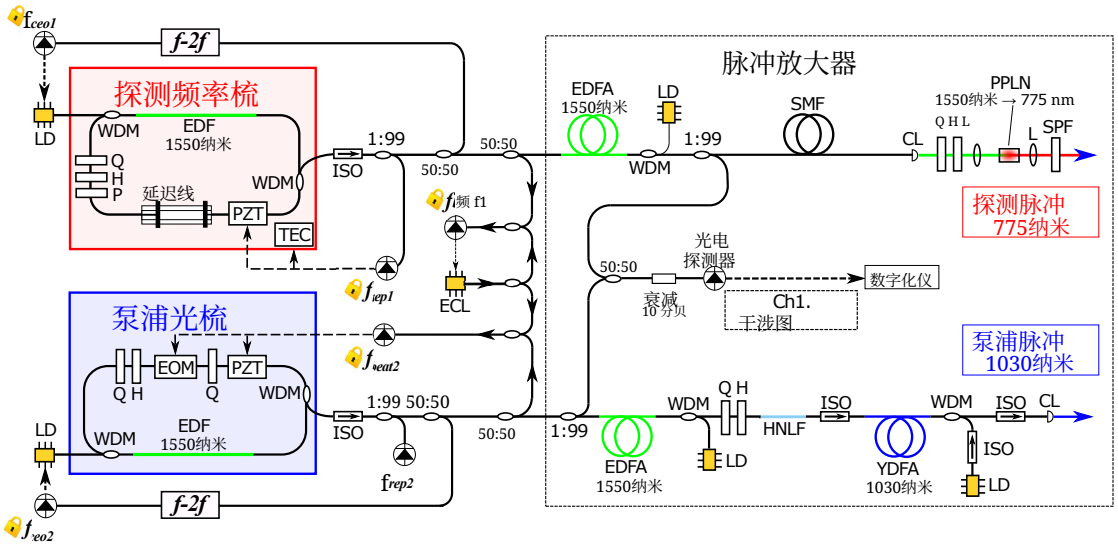

图1.双色双梳系统示意图。组件如下。ECL：外腔激光器，LD：激光二极管，EDF：掺铒光纤，EDFA：掺铒光纤放大器，YDFA：掺镱光纤放大器，HNLF：高非线性光纤，PZT：压电元件，TEC：热电制冷器，EOM：电光调制器，WDM：波分复用耦合器，Q：四分之一波片，H：半波片，P：偏振器，ISO：隔离器，Atten：衰减器，f-2f：f-2f干涉仪，SMF：单模光纤，PPLN：周期性极化铌酸锂，SPF：单模光纤，L：透镜，CL：准直透镜，以及Ch1.：通道1。

$\Delta f_{rep}/(f_{rep1} \cdot f_{rep2}) = 1/(N \cdot f_{rep2})$[42]。此外，我们以 f_{rep1}的采样频率记录由探测光梳光束探测到的信号。因此，所记录信号的每个数据点都表示比前一个数据点晚 timeτ_{step} 的样品状态。此外，在该异步光学采样方法的实现中，总延迟时间为 $\tau_{total} = N \times \tau_{step} = 1/f_{rep2}$。时间动态范围[42], 即总延迟时间与延迟时间增量之比，

$$\tau_{total}/\tau_{step} = N. \tag{3}$$

请注意，在实验室参考系中记录单次扫描所需的实际测量时间为$\tau_{scan} = 1/\Delta f_{rep}$。

B. 波长转换、脉冲放大和脉冲压缩

图1右侧展示了我们双梳系统中的波长转换和脉冲放大的示意图（脉冲压缩将在后文解释）。泵浦梳光源的1550纳米输出首先由掺铒光纤放大器（EDFA）放大，该放大器以掺铒光纤作为放大介质（ER30-4/125，Thorlabs），随后通过高非线性光纤（HNLF）将光谱带宽展宽至接近1000纳米。为说明实验中所使用的泵浦脉冲的频谱，图2(a)和图2(b)分别展示了泵浦脉冲经过HNLF后、未经和经EDFA放大时的光谱（我们可以确认，在未放大的情况下，种子脉冲的中心波长为1580.0纳米，光谱带宽约为60纳米）。EDFA的放大导致种子脉冲的频谱显著展宽。如图1所示，展宽后的脉冲通过光纤隔离器（IO-F-1030，Thorlabs），并作为第二级放大的种子脉冲：采用掺镱光纤放大器（YDFA）（放大介质：SCF-YB550-4/125-19，CorActive）来放大1030纳米附近的光谱成分。在我们的实验中，经过YDFA后的光谱峰值的确切位置为1032.8纳米，如图2(c)所示。放大后的泵浦脉冲输出功率约为100 mW，足以满足本研究中的实验需求。探测梳光源的1550纳米输出同样由EDFA（ER30-4/125，Thorlabs）放大，随后在周期性极化铌酸锂（PPLN）晶体中通过SHG将中心波长转换至约775纳米（在我们的实验中，获得的中心波长为779.4纳米）。因此，我们实现了一个发射时序完全稳定的双色双梳系统。

由于掺铒光纤和用于放大的掺镱光纤具有正色散，放大后的光脉冲带有正啁啾。这种脉冲的时间展宽会导致光学泵浦–探测测量的时间分辨率降低，并导致二次谐波产生效率降低。因此，有必要通过引入负啁啾或进行脉冲压缩来补偿色散。图3用于描述脉冲压缩以及用于表征泵浦脉冲的光学器件。掺镱光纤放大器的输出首先通过两块平行排列的透射光栅（T-1000-1040-3212-95，LightSmyth）进行压缩，其线密度为1000线/mm。两块光栅之间的距离约为31 mm，入-射角约为 28°。通过使用干涉自相关监测脉冲压缩后的脉冲宽度，对两块光栅之间的距离进行了优化

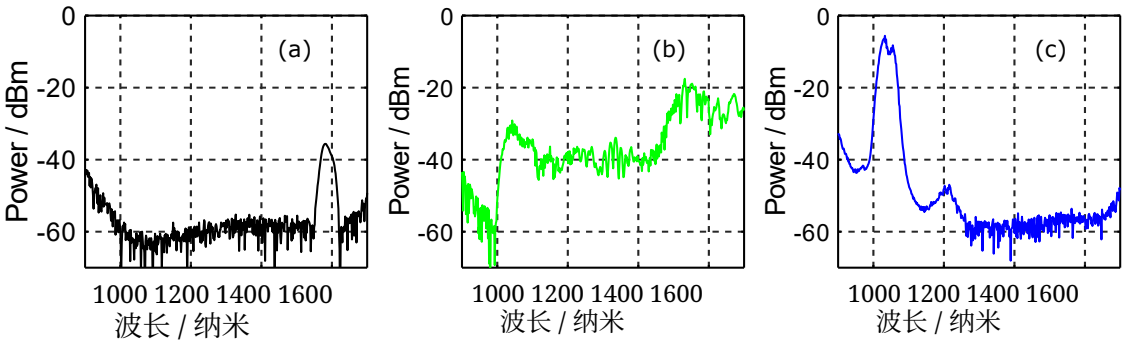

图2.(a)掺铒光纤放大器中未经过放大的高非线性光纤之后的泵浦梳状脉冲光谱；(b) 掺铒光纤放大器中经过放大的高非线性光纤之后的泵浦梳状脉冲光谱；以及(c)掺铒光纤放大器中经过放大后的掺镱光纤放大器之后的泵浦梳状脉冲光谱。高非线性光纤之后放大的泵浦梳状光束的输出功率为186 mW，而掺镱光纤放大器之后的输出功率为105 mW。

图3右侧所示的测量。该系统由迈克耳孙干涉仪、用于二次谐波产生（SHG）的β-硼酸钡（BBO）晶体以及检测所需的组件组成。优化完成后，通过机械翻转镜将反射镜插入光路，以将压缩后的泵浦梳状光束重新定向至样品。对于探测脉冲，如图1所示，在二次谐波产生光学元件前放置具有负色散的单模光纤（SMF）（SMF-28，Thorlabs），从而实现色散补偿。通过使用另一套干涉自相关测量系统监测种子脉冲的脉冲宽度，并改变单模光纤的长度，对用于二次谐波产生的种子脉冲进行脉宽优化。实验中使用的探测脉冲（779.4纳米）由经过优化的种子脉冲进行二次谐波产生后得到。

我们系统的时间分辨率（将在第IID节讨论）也取决于脉冲的电场包络。压缩后的泵浦脉冲的干涉自相关信号如图4(a)所示。为了拟合数据，我们假设泵浦脉冲可以用线性啁啾高斯脉冲来描述，即泵浦脉冲的复电场包络 $\tilde{\varepsilon}_{\mathrm{pump}}(t)$ 可写为：

$$\tilde{\varepsilon}_{\mathrm{pump}}(t) \propto \exp\left(-(1+ia)\left(\frac{t}{\tau_g}\right)^2\right), \tag{4}$$

其中，t 为时间，τ_g 为脉冲宽度，a 为啁啾参数。在这种情况下，干涉自相关信号 G_2 应变为[53]：

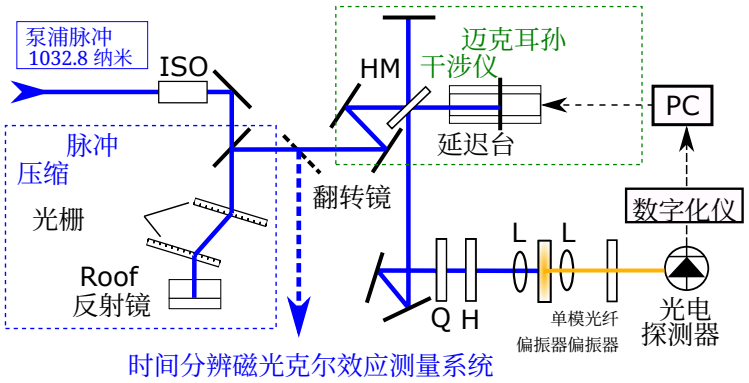

图3. 脉冲压缩级和脉冲宽度测量系统示意图。各组件如下。ISO：隔离器，HM：半反射镜，Q：四分之一波片，H：半波片，BBO：硼酸钡晶体，SPF：短波通滤光片，L：透镜，TR-MOKE：时间分辨磁光克尔效应。

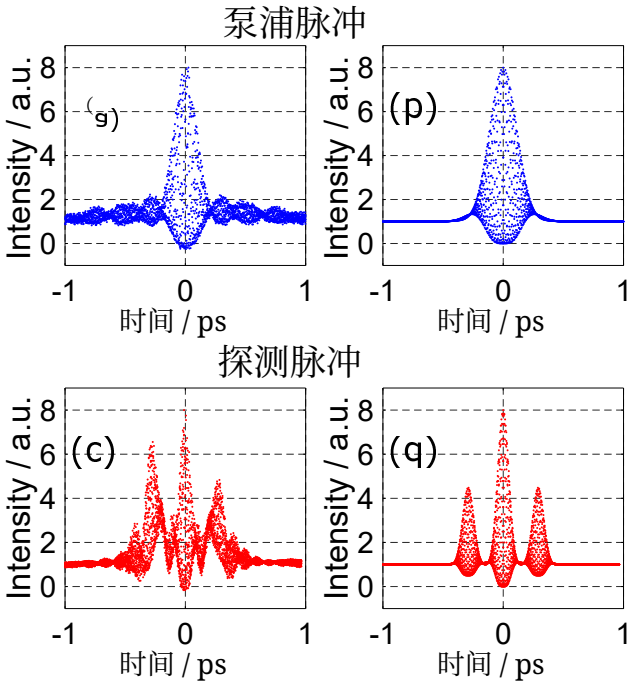

图4. (a) 泵浦脉冲的干涉自相关信号；(b) 将实验数据拟合到方程（5）所得的结果。实验数据经过归一化（背景信号为1，最大信号值为8）。泵浦光的拟合参数为$\tau_g = 0.205$ ps、a $= 1.72$和f $= 277.0$ THz。(c) 探测脉冲的干涉自相关信号；(d) 将实验数据拟合到方程（6）所得的结果。探测光为双脉冲，我们估算得到$\tau_g = 0.0707$ ps、a $= 1.03$、f $= 194.3$ THz、d $= 0.291$ ps和A $= 0.953$。

$$G_2(\tau) \propto 1 + 2\exp\left(-\left(\frac{\tau}{\tau_g}\right)^2\right) + 4\exp\left(-\frac{a^2+3}{4}\left(\frac{\tau}{\tau_g}\right)^2\right)\cos\left(\frac{a}{2}\left(\frac{\tau}{\tau_g}\right)^2\right)\cos(2\pi f_0\tau) + 4\exp\left(-(a^2+1)\left(\frac{\tau}{\tau_g}\right)^2\right)\cos(4\pi f_0\tau), \tag{5}$$

其中，τ是延迟时间，f_0 是泵浦脉冲的中心频率。我们采用最小二乘法将图4(a)中的实验数据拟合到公式（5），图4(b)显示了拟合结果（$\tau_g = 0.205$ ps、$a = 1.72$和$f_0 = 277.0$ THz）。

为了讨论探测脉冲的电场包络，我们分析了“种子”脉冲（波长为1550纳米）的自相关信号，而不是由二次谐波产生生成的探测脉冲的自相关信号，因为由于二次谐波产生输出的强度较小，我们无法直接评估其脉冲宽度。色散补偿种子脉冲的干涉自相关信号如图4(c)所示。观测到了多个峰，该信号无法由式（5）所述的单脉冲干涉自相关信号重现。这种多峰结构源于具有双峰结构的种子脉冲，这可能是由锁模激光系统中有时出现的峰值功率钳制效应引起的[54]。为了在拟合过程中考虑多峰结构，我们计算了以下情况的自相关信号：种子脉冲的复电场振幅 $\tilde{\varepsilon}_{\text{seed}}(t)$为双高斯脉冲；

$$\tilde{\varepsilon}_{\text{seed}}(t) \propto \exp\left(-(1+ia)\left(\frac{t}{\tau_g}\right)^2\right) + A\exp\left(-(1+ia)\left(\frac{t-d}{\tau_g}\right)^2\right), \tag{6}$$

其中，d 是两个脉冲之间的时间差，A 是两个脉冲电场振幅之比。这里，可以用与泵浦脉冲相同的方法推导种子脉冲的自相关函数，以进行数值拟合。图4(d)显示了得到的拟合结果（$\tau_g = 0.0707$ ps，$a = 1.03$，$f_0 = 194.3$ THz，$d = 0.291$ ps，且 $A = 0.953$），与实验观测到的信号吻合良好。图4(c)中左右峰值高度的差异，是由于迈克耳孙干涉仪未对准，导致两束光的空间重叠不准确所致。如上所述，实验中使用该种子脉冲的二次谐波作为探测脉冲。虽然我们无法直接测量二次谐波产生输出的自相关信号，但第 II D 节给出的泵浦-探测信号数值预测表明，周期性极化铌酸锂晶体的色散导致种子脉冲的两个峰发生的时间展宽，小于两峰之间的时间间隔，因此时间间隔 d 对泵浦-探测信号有显著影响。

C. 基于异步光学采样的 TR-MOKE 测量

图5展示了使用我们的异步光学采样系统进行时间分辨磁光克尔效应（TR-MOKE）测量的示意图。蓝色曲线表示压缩后的泵浦梳状脉冲，该脉冲经二向色镜反射，并由物镜聚焦到样品上；物镜的放大倍率为 50×，工作距离为8.2 mm，数值孔径为0.55（在我们的实验中，样品表面上1032.8 nm泵浦梳状光束的光斑尺寸和激发通量分别为2.18 μm和6.80 mJ/cm^2, ，前一数值通过刀口法估算）。红色曲线表示探测脉冲，该脉冲与泵浦脉冲同轴对准，并使用同一物镜聚焦到磁性样品上（样品表面上779.4 nm探测梳状光束的光斑尺寸和激发通量分别为1.61 μm和10.7 mJ/cm^2, ）。可通过电荷耦合器件相机（IC4133BU，Gazo）监测泵浦梳状光束与探测梳状光束之间的空间重叠。探测梳状脉冲通过图5左侧所示的格兰-汤普森棱镜（GTP）后，沿 y 方向线偏振；由于极向克尔效应，该脉冲从样品表面反射时，其偏振面会发生旋转。随后，反射的探测脉冲由分束镜偏转，透过四分之一波片，并由沃拉斯顿棱镜分束。采用平衡探测方案分析分束光束所含的信息，频率分辨率为 $f_{det} = 1$ MHz（PDB210A，Thorlabs）。信号由数字化仪（M2p.5962-x4，Spectrum）以 f_{rep1} 的采样频率记录。如第 II A 节所述，系统会自动获取时间分辨磁光克尔效应信号的时域波形；一次时间分辨磁光克尔效应扫描包含 N 个采样点，其中 N 由公式（2）确定。由于两个脉冲的频率经过严格稳定，该系统无需使用触发信号反复启动单个波形的记录以进行平均[44]。

关于所使用的样品，我们通过真空电子束沉积，在硅衬底上制备了厚度为 20nm的坡莫合金（$Ni_{0.8}Fe_{0.2}$）薄膜。我们使用钕磁体对样品施加外部磁场，其中磁体轴线与样品法线方向之间的夹角为 12°。磁场强度 H_{ext} 通过改变样品与磁体之间的距离进行调节，并在实验前使用高斯计（TM- 701，KANETEC）进行校准。

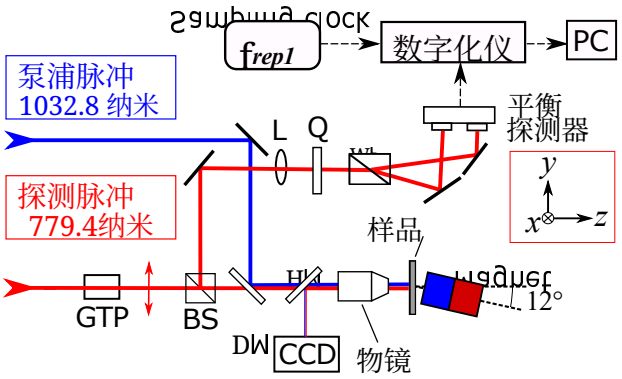

图 5.基于异步光学采样的时间分辨磁光克尔效应测量示意图。各部件如下。GTP：格兰-汤普森棱镜，BS：分束镜，DM：二向色镜，HM：半透镜，CCD：电荷耦合器件相机，Q：四分之一波片，L：透镜，WP：沃拉斯顿棱镜。

D. 决定异步光学采样系统时间分辨率的因素

有两个因素限制时间分辨率；泵浦脉冲和探测脉冲的脉冲宽度，以及探测器带宽。首先考虑脉冲宽度的影响：通过计算我们系统的以下时间轮廓，可以确定其阶跃响应的大致形状，即信号I(t)[55]；

$$I(t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} d\tau' \int_{-\infty}^{\infty} d\tau'' \, \tilde{\varepsilon}^2_{\text{pump}}(\tau') \cdot -\mathscr{H}(t-\tau'+\tau'') \cdot \tilde{\varepsilon}^2_{\text{probe}}(\tau''), \tag{7}$$

其中，$\tilde{\varepsilon}_{\text{pump}}(\tau')$ 和 $\tilde{\varepsilon}_{\text{probe}}(\tau'')(\propto \tilde{\varepsilon}^2_{\text{seed}}(\tau''))$ 分别是第 II B 节中确定的泵浦脉冲和探测脉冲的复电场振幅。 $\mathscr{H}$(t) 是海维赛德阶跃函数。这里，我们忽略周期性极化铌酸锂晶体中双峰脉冲各峰的时间展宽，因此，式（6）中用于描述种子脉冲的参数 a 也用于描述二次谐波产生所产生的脉冲。图 6 展示了 I(t) 的时间轮廓。I(t) 的上升时间约为 0.8 ps；若探测器带宽不是限制因素，这就是我们系统的大致时间分辨率。我们发现，式（6）中的时间间隔 d 对上升时间有显著影响，因此，抑制泵浦脉冲和探测脉冲中的多峰结构对于提高时间分辨率至关重要。

关于探测器带宽的影响，由于在异步光学采样系统中获取单个时域波形所需的测量时间非常短，探测器带宽 f_{det} （在我们的系统中为~1 MHz）有时会限制泵浦-探测信号的时间分辨率。As

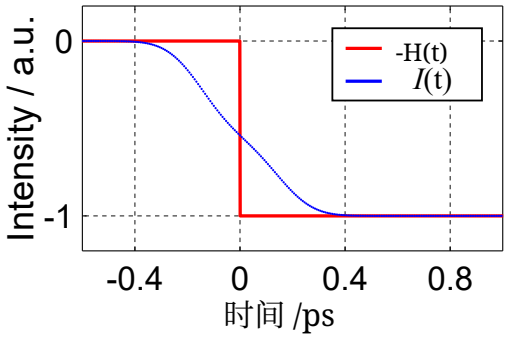

图 6. 使用式（7）计算的系统对赫维赛德步长函数的响应时间轮廓。信号上升/下降的持续时间约为 0.8 ps。

如第二节A所述，单个波形的实际所需测量时间 τ_{scan}是 Δf^{rep}的倒数，而波形的最大时间延迟是f^{rep2} (∼61.5 兆赫兹，在我们的系统中)。因此，由探测器带宽确定的时间分辨率为 $t_{det} = \Delta f_{rep}/(f_{det} \cdot f^{rep2})$[44]。因此，$t_{det}$ 会随着 Δf^{rep} 变小而变短。在我们的系统中，当 $\Delta f_{rep} = 49$ 赫兹时，$t_{det} = 0.8$ps。因此，如果 $\Delta f_{rep} > 49$ 赫兹，时间分辨率受探测器带宽限制；而使用 $\Delta f_{rep} < 49$ 赫兹时，时间分辨率由脉冲宽度决定。

III. 结果与讨论

A. 超快自旋进动的观测

我们首先使用所开发的异步光学采样泵浦-探测系统，在相对较强的磁场下，对光激发坡莫合金（Py）薄膜所引起的磁化动力学进行表征。表 I 显示了本实验的测量条件。我们设置 $\Delta f_{rep} \approx 25.140$ 赫兹，因此时间分辨率受泵浦脉冲和探测脉冲的脉冲宽度限制。图7(a)显示了对连续 1000 次扫描取平均后得到的时间分辨磁光克尔效应信号，单次扫描的时间范围为 $\tau_{total} = 1/f_{rep2} = 16.25$ 纳秒。记录这些数据所需的总测量时间为 39.78 秒。图7(b)放大显示了图7(a)中时间原点附近的数据。可以看出，光诱导的自旋进动持续约 2.0 纳秒。我们通过将实验数据拟合到以下函数[22]，评估了自旋进动的振荡参数：

$$I_{\mathrm{Kerr}}(t) \propto B\exp\left(-\frac{t}{\tau_a}\right)\cos\left(2\pi f_r t + \theta\right) + C\exp\left(-\frac{t}{\tau_b}\right). \tag{8}$$

表 I. 图7的实验条件。

N	2447514
f_{rep1}	61,530,120.000 赫兹
f_{rep2}	61,530,145.140 赫兹
Δf_{rep}	25.140 赫兹
τ_{step}	6.640 飞秒
τ_{total}	16.252 纳秒
τ_{scan}	39.777 毫秒
H_{ext}	417 mT

其中，第一项对应磁化振荡分量，第二项对应非磁性背景分量。B 和 C 是这两个分量的振幅，f_r 是共振频率，θ是相位，τ_a 和τ_b 是阻尼常数。图7(b)中蓝色曲线对应的 f_r、τ_a和τ_b 近似值分别为 6.73 GHz、592 皮秒和 673 皮秒。这些数值与文献[4,56]中的数值处于同一数量级。图7(c)放大显示了泵浦脉冲照射后最初八皮秒内的信号：时间分辨磁光克尔效应信号在约 0.8 皮秒内急剧下降，随后略微恢复，表明泵浦脉冲照射引起了超快退磁。此前一项关于铁磁性镍超快退磁的研究中，观测到约 100 飞秒的退磁时间[16]。图7(c)中初始急剧下降的持续时间明显更长。我们认为，观测到的 0.8 皮秒持续时间与我们系统的时间分辨率一致，详见 II D 节。图7(d)显示了对图7(a)中的时间分辨磁光克尔效应信号进行快速傅里叶变换（FFT）后得到的频谱。峰值出现在 6.71 GHz，接近将图7(b)中的信号拟合到公式 (8) 所得的数值。

B. 自旋进动频率的磁场依赖性

本节评估自旋进动频率对磁场的依赖性，并验证测量程序的有效性。表 II 显示了这些实验的测量条件。为更快地评估自旋进动频率，我们将 $\Delta f_{rep} \approx 377.541$ 赫兹设为相应值，因此时间分辨率由探测器带宽决定；t_{det} =6.1 ps，这足以追踪振荡。图 8(a) 显示了时间分辨磁光克尔效应信号

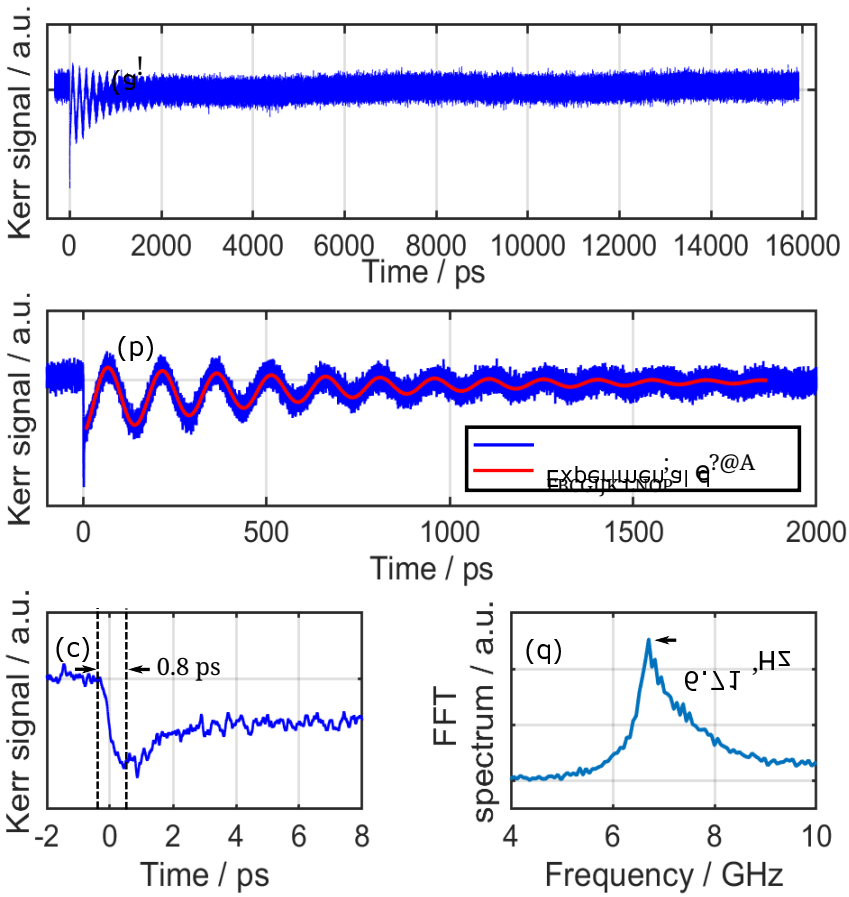

图7. (a) 基于异步光学采样的磁克尔旋转超快时间分辨测量结果。(b) 自旋进动发生范围内的 TR-MOKE 数据。拟合结果以红色曲线表示，参数如下：$f_r = 6.73$ GHz、$\tau_a = 592$ ps 和 $\tau_b = 673$ ps。(c) 超快退磁发生范围内的 TR-MOKE 数据。(d) (a) 中所示数据的快速傅里叶变换频谱。

表 II. 图 8 的实验条件。

N	162976
f_{rep1}	61,530,120.000 赫兹
f_{rep2}	61,530,497.541 赫兹
Δf_{rep}	377.541 赫兹
τ_{step}	99.721 飞秒
τ_{total}	16.252 纳秒
τ_{scan}	2.649 毫秒

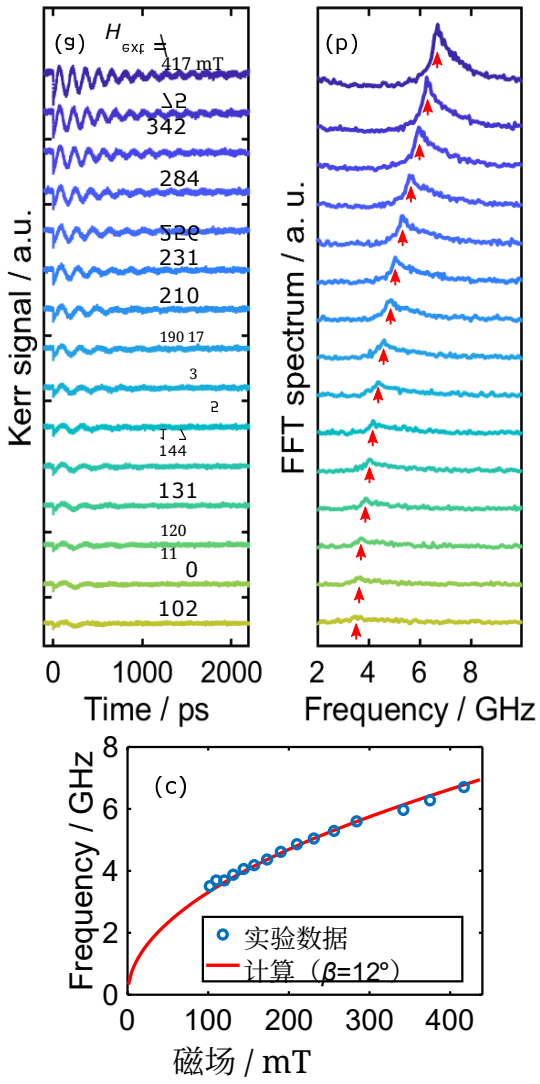

图8。（a）共振频率对外部磁场的依赖关系。（b）通过 FFT获得的相应频域波形。红色箭头表示峰值位置。（c）基于Smit–Beljers 方法的数值预测与实验值的比较（β = 12°）。

在不同外部磁场下从样品中获得。对于每条曲线，我们将 TR-MOKE 波形累积约 5000 次，耗时约 13 秒。图 8(b) 显示了对图 8(a) 中曲线进行 FFT 后得到的光谱，我们可以确认，自旋进动运动的峰值频率随外部磁场增大而升高。图 8(c) 绘出了峰值频率随外部磁场变化的关系。该实验结果可用 Smit 和 Beljers 的方法描述如下[57]：首先，在数值处理.....

Landau–Lifshitz–Gilbert（LLG）方程中，Py 薄膜的磁化强度天顶角（记为 θ）可由以下方程推导为 H_{ext} 的函数：

$$2H_{\text{ext}}\sin(\theta-\beta)-M_s\sin 2\theta=0, \tag{9}$$

其中，$M_s = 522000\,A\cdot m^{-1}$ 是坡莫合金的饱和磁化强度，β 是外部磁场的天顶角，在我们的测量中该角度为 12° 。因此，自旋进动的共振频率为[27,57]，

$$f=\frac{\gamma\mu_0}{2\pi}\sqrt{[H_{\text{ext}}\cos(\theta-\beta)-M_s\cos 2\theta]\times[H_{\text{ext}}\cos(\theta-\beta)-M_s\cos^2\theta]}, \tag{10}$$

其中，$\gamma = 1.76252\times10^{11}\,s^{-1}\cdot T^{-1}$ 是旋磁比。图 8(c) 中的实线表示根据公式（10）得出的 f 随 H_{ext} 变化的理论值。实验结果与理论预测吻合良好，这表明我们的测量方法成功应用于光诱导自旋进动的表征。

IV. 结论

我们使用无触发异步光学采样系统，展示了铁磁薄膜中超快磁化动力学的时间分辨测量。用于泵浦–探测测量的光源是双色双梳系统，我们在相对较短的测量时间内（包括数据累积在内为几十秒），获取了从皮秒到纳秒范围内的时间分辨信号。我们证明，所观测到的Py薄膜自旋进动频率的外部磁场依赖性与数值预测结果非常吻合。我们认为，这种基于双梳架构的异步光学采样系统能够实现对磁化动力学的高分辨率和超快测量。此外，该系统可作为需要进行大量独立测量的实验的有力工具，例如成像实验（例如，我们考虑将此类异步光学采样系统应用于自旋波传播的时空成像，这是对本研究的延伸）。该方法的测量时间远短于基于使用延迟台的传统泵浦–探测方法，并且对于快速表征光泵浦磁性样品中的磁化动力学，此类方法具有许多潜在应用。

致谢

我们谨向 Yukio Nozaki 教授致以谢意，感谢其富有成效的讨论，并感谢今井女士在构建实验系统方面提供的帮助。本研究部分得到了 JST、CREST 资助项目（资助编号：JPMJCR19J4）以及 MEXT Quantum Leap Flagship Program（MEXTQ-LEAP）的支持，资助编号为 JPMXS0118067246。

参考文献

[1]I. Žuti´c,J. Fabian, and S. D.Sarma, 《现代物理评论》76,323 (2004).[2]S. Maekawa,《自旋电子学概论》，第13卷（牛津大学出版社，2006年）。[3]A. V. Chumak, V. I. Vasyuchka,A. A.Serga, and B. Hillebrands, 《自然·物理》11,453 (2015).[4]W. K. Hiebert, A. Stankiewicz, and M. R. Freeman, 《物理评论快报》79, 1134 (1997).[5]R. L.StampsandB. Hillebrands, 《应用物理快报》75, 1143 (1999).[6]M. Bauer, R. Lopusnik, J. Fassbender, andB. Hillebrands,《磁学与磁性材料杂志》218, 165 (2000).[7]Y. Acremann, M. Buess, C.H. Back, M. Dumm, G. Bayreuther,andD.Pescia, 《自然》414, 51(2001).[8]B. C. Choi, M. Belov,W. K. Hiebert, G. E. Ballentine, and M. R. Freeman, 《物理评论快报》86, 728 (2001).[9]T. Gerrits, J. Hohlfeld, O. Gielkens, K. J. Veenstra, K. Bal, T. Rasing,andH.A. M. van denBerg,《应用物理学杂志》89, 7648(2001).[10]T. Gerrits, H.A.M. van den Berg, J.Hohlfeld,L. Bär, andT. Rasing, 《自然》418, 509 (2002).[11]M. P. Kostylev, A. A. Serga, T. Schneider, B.Leven,and B. Hillebrands,《应用物理快报》87, 153501(2005).[12]D.D.Stancil and A.Prabhakar,《自旋波》，第5卷（施普林格出版社，2009年）。[13]A. V. Chumak,A. A. Serga, and B.Hillebrands, 《自然通讯》5,4700 (2014).[14]A. Kirilyuk,A. V. Kimel, and T. Rasing, 《现代物理评论》82,2731 (2010).[15] A. Hirohata, K. Yamada,Y. Nakatani, I.-L. Prejbeanu, B. Diény,P.Pirro, andB. Hillebrands,《磁学与磁性材料杂志》509, 166711(2020).[16]E. Beaurepaire, J.-C. Merle,A.Daunois, and J.-Y.Bigot, 《物理评论快报》76,4250 (1996).[17]J. Hohlfeld, E. Matthias,R.Knorren,and K. H. Bennemann, 《物理评论快报》78, 4861 (1997)。

[18]B. Koopmans、M. vanKampen、J. T.Kohlhepp 和 W. J. M.deJonge，《物理评论快报》85，844（2000）。[19]G. Ju、A. V. Nurmikko、R. F. C. Farrow、R. F. Marks、M.J.Carey 和 B. A.Gurney，《物理评论快报》82，3705（1999）。[20]M. van Kampen、C.Jozsa、J.T. Kohlhepp、P. LeClair、L. Lagae、W. J. M.de Jonge 和B. Koop-mans，《物理评论快报》88，227201（2002）。[21]A. V.Kimel、B. A. Ivanov、R. V. Pisarev、P. A.Usachev、A.Kirilyuk 和 T.Rasing，Nat. Phys.5，727（2009）。[22]J. Kisielewski、A. Kirilyuk、A. Stupakiewicz、A. Maziewski、A. Kimel、T. Rasing、L.T.Baczewski 和 A.Wawro，《物理评论 B》85，184429（2012）。[23]F. Hansteen、A.Kimel、A.Kirilyuk 和T.Rasing，《物理评论B》73，014421（2006）。[24]T.Satoh、N.P. Duong 和M.Fiebig，《物理评论B》74，012404（2006）。[25]A. Kimel、A. Kirilyuk和T. Rasing，LaserPhotonics Rev. 1，275（2007）。[26]T. Kampfrath、A. Sell、G. Klatt、A.Pashkin、S. Mährlein、T. Dekorsy、M. Wolf、M. Fiebig、A. Leitenstorfer 和 R. Huber，Nat. Photonics 5，31（2011）。[27]H. Shibata、M. Okano和 S. Watanabe，《物理评论B》97，014438（2018）。[28]M. Okano、T.Takahashi 和 S.Watanabe，《应用物理快报》117，082407（2020）。[29] T. Satoh、Y. Terui、R. Moriya、B. A. Ivanov、K. Ando、E. Saitoh、T. Shimura 和 K.Kuroda，Nat. Photonics 6，662（2012）。[30]Y. Au、M. Dvornik、T.Davison、E. Ahmad、P. S. Keatley、A. Vansteenkiste、B. VanWaeyenberge 和 V. V.Kruglyak，《物理评论快报》110，097201（2013）。[31]S. Iihama、Y.Sasaki、A. Sugihara、A. Kamimaki、Y. Ando和 S. Mizukami，《物理评论B》94，020401（2016）。[32]P. A. Elzinga、R. J.Kneisler、F. E. Lytle、Y. Jiang、G.B. King 和 N.M. Laurendeau，Appl. Opt. 26，4303（1987）。[33]S. Adachi、S. Takeyama和 Y.Takagi，《光学通信》117，71（1995）。[34]T. Yasui、E.Saneyoshi 和 T.Araki，《应用物理快报》87，061101（2005）。[35]A. Bartels、R. Cerna、C. Kistner、A. Thoma、F. Hudert、C. Janke 和 T. Dekorsy，《科学仪器评论》78，035107（2007）。[36]V. A. Stoica、Y.-M.Sheu、D. A. Reis 和R.Clarke，《光学快报》16，2322（2008）。[37]A.Abbas、Y. Guillet、J.-M. Rampnoux、P. Rigail、E. Mottay、B. Audoin和 S. Dilhaire，《光学快报》22，7831（2014）。

[38]J. T. Good、D. B. Holland、I. A. Finneran、P. B. Carroll、M. J. Kelley 和 G. A. Blake，《科学仪器评论》86，103107（2015）。[39]N. Krauß、G. Schäfer、J. Flock、O. Kliebisch、C. Li、H. G. Barros、D. C. Heinecke 和 T. Deko- rsy，《光学快报》23，18288（2015）。[40]K. Hitachi、M. Someya、A. Ishizawa、T. Nishikawa 和 H. Gotoh，《应用物理快报》113，201102（2018）。[41]A. Scherbakov、A. Danilov、F. Godejohann、T. Linnik、B. Glavin、L. Shelukhin、D. Pattnaik、M. Wang、A. Rushforth、D. Yakovlev、A. Akimov 和 M. Bayer，《物理评论：应用》11，031003（2019）。[42]A. Asahara、Y. Arai、T. Saito、J. Ishi-Hayase、K. Akahane 和 K. Minoshima，《应用物理快报》13，062003（2020）。[43]M. Nakagawa、M. Okano 和 S. Watanabe，《光学快报》30，29421（2022）。[44]M. Okano 和 S. Watanabe，《光学快报》30，39613（2022）。[45]H. Inaba、Y. Daimon、F.-L. Hong、A. Onae、K. Minoshima、T. R. Schibli、H. Matsumoto、M. Hi- rano、T. Okuno、M. Onishi 和 M. Nakazawa，《光学快报》14，5223（2006）。[46]H. Liu、S. Cao、W. Wang、B. Lin、W. Lu 和 Z. Fang，《光学通信》397，161（2017年）。[47]H. Liu、S. Y. Cao、Y. Yu、B. K. Lin、W. P. Lu 和 Z. J. Fang，《测量科学与技术》28，105202（2017年）。[48]T. Fukuda、M. Okano 和 S. Watanabe，《光学快报》29，22214（2021）。[49]R. Holzwarth、T. Udem、T. W. Hänsch、J. C. Knight、W. J. Wadsworth 和 P. S. J. Russell，《物理评论快报》85，2264（2000）。[50]D. J. Jones、S. A. Diddams、J. K. Ranka、A. Stentz、R. S. Windeler、J. L. Hall 和 S. T. Cundiff，《科学》288，635（2000）。[51]Y. Nakajima、H. Inaba、K. Hosaka、K. Minoshima、A. Onae、M. Yasuda、T. Kohno、S. Kawato、T. Kobayashi、T. Katsuyama 和 F.-L. Hong，《光学快报》18，1667（2010）。[52]A. Asahara 和 K. Minoshima，《APL光子学》2，041301（2017年）。[53]J.-C. Diels 和 W. Rudolph，《超短激光脉冲现象》（爱思唯尔，2006年）。[54]D. Y. Tang、L. M. Zhao、B. Zhao 和 A. Q. Liu，《物理评论A辑》72，043816（2005）。[55]D. Polli、D. Brida、S. Mukamel、G. Lanzani 和 G. Cerullo，《物理评论A辑》82，053809（2010）。[56]S. Mizukami、Y. Ando 和 T. Miyazaki，《日本应用物理学杂志》40，580（2001）。[57] J. Smit 和 H. G. Beljers，《飞利浦研究报告》10，113（1955）。