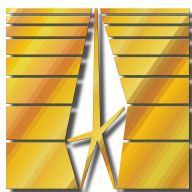


На правах рукописи



Федянин Анатолий Евгеньевич

**Лазерно-индуцированная динамика
спиновых корреляций на частотах двухмагнонных мод
в кубических антиферромагнетиках**

Специальность 1.3.8 —
«Физика конденсированного состояния»

Автореферат
диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург — 2025

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук.

Научный руководитель: PhD (приравниваемая в РФ к степени к.ф.-м.н.)
Калашникова Александра Михайловна,
внс, заведующий лабораторией Физики ферроиков, ФТИ им. А. Ф. Иоффе

Официальные оппоненты: **Овчинников Сергей Геннадьевич**,
доктор физико-математических наук,
профессор, внс, заведующий кафедрой Теоретической физики и волновых явлений,
Сибирский федеральный университет

Тарасенко Сергей Анатольевич,
доктор физико-математических наук, профессор,
член-корреспондент РАН,
внс, заведующий сектором Теории квантовых когерентных явлений в твердом теле,
ФТИ им. А. Ф. Иоффе

Ведущая организация: Федеральное государственное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова»

Защита состоится "____" _____ 2025 г. в _____ на заседании диссертационного совета ФТИ 34.01.01 при ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН по адресу: 194021, Санкт-Петербург, ул. Политехническая, д. 26.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Физико-технического института им. А. Ф. Иоффе РАН и на сайте <http://www.ioffe.ru>.

Отзывы на автореферат в одном экземпляре, заверенные печатью учреждения, просьба направлять по адресу: 194021, Санкт-Петербург, ул. Политехническая, д. 26, ученому секретарю диссертационного совета ФТИ 34.01.01.

Автореферат разослан "____" _____ 2025 года.

Ученый секретарь
диссертационного совета
ФТИ 34.01.01,
PhD

Калашникова А. М.

Общая характеристика работы

Актуальность темы.

Активное развитие лазерных технологий позволило значительно расширить возможности возбуждения и детектирования магнитной динамики в твердых телах. Благодаря лазерному возмущению возможна реализация таких процессов как сверхбыстрое размагничивание, полностью оптическое переключение и намагниченности возбуждение спиновых волн, что может быть использовано в устройствах хранения информации. Дальнейшее развитие информационных технологий тесно связано с увеличением быстродействия при уменьшении геометрических размеров устройств. Одним из перспективных классов материалов для решения данной задачи являются антиферромагнетики, обладающие более высокой частотой магнитных возбуждений по сравнению с ферромагнетиками. Было показано, что электрическое поле лазерного излучения способно модулировать величину обменного взаимодействия, определяющего частоты магнитных возбуждений в антиферромагнетиках. В свою очередь, изменение обменного взаимодействия в антиферромагнетиках способно приводить к возбуждению так называемых двухмагнонных мод, соответствующих возбуждению пар магнонов с противоположными волновыми векторами. При этом снимается одно из главных ограничений, существующих для оптических методик возбуждения магнонов – закон сохранения импульса, который связывает волновой вектор фотона с волновым вектором возбуждаемой моды. В случае двухмагнонных мод, их суммарный волновой вектор оказывается равен нулю, а значит рассеяние света на данной моде разрешено даже если магноны, входящие в пару, обладают крайне высокими волновыми векторами. Более того, в силу дисперсионных соотношений для магнонов в антиферромагнетиках, в среднем свет будет испытывать рассеяние чаще всего на магнонах с границы зоны Бриллюэна, где частота достигает максимума. Таким образом, двухмагнонные моды, образованные магнонами с границы зоны Бриллюэна, обладают крайне высокой частотой, лежащей в ТГц области и может наблюдаться при спонтанном комбинационном рассеянии света (КРС).

Появление лазеров с длительностями импульсов порядка фемтосекунд позволило открыть возможность использовать широкий спектр импульсов для реализации импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света (ИВКРС), при котором в спектре света присутствуют частоты с разницей, соответствующей модам материала. Выгодным отличием данной методики от КРС оказывается способность исследовать когерентную динамику как с низкими частотами, так и с высокими, порядка ТГц, что дает возможность исследовать двухмагнонные моды во временной области при импульсном возбуждении.

В настоящее время существует ряд экспериментальных работ по возбуждению когерентных двухмагнанных мод в антиферромагнетиках. Однако, их количество и набор материалов остается достаточно малым в силу высокой сложности проведения экспериментов, что, в частности, приводит к противоречивым интерпретациям наблюдаемых эффектов и микроскопической картины всего процесса. По этой причине возникает необходимость в создании единого теоретического описания процессов ИВКРС на двухмагнанных модах и последующей динамики оптических параметров системы, детектируемых зондирующим лазерным импульсом. При этом, стандартные подходы для описания магнитной динамики, основанные на антиферромагнитном векторе, оказываются неприменимыми, и возникает потребность в определении более подходящего параметра, описывающего динамику. Более того, несмотря на то, что в основе спонтанного и импульсного вынужденного комбинационного рассеяния лежат одни и те же физические процессы, получаемы в экспериментальных работах спектры двухмагнанных мод имеют отличия, что может быть связано как с особенностями методик, так и с более фундаментальными особенностями. Такими образом, актуальность данной работы обусловлена представленными проблемами, возникшими в ходе исследования сверхбыстрой магнитной динамики в антиферромагнетиках.

Целью данной работы является теоретическое описание лазерно-индуцированной динамики спиновых корреляций в кубических диэлектрических антиферромагнетиках на частотах двухмагнанных мод и ее влияния на макроскопические магнитные и оптические свойства кристалла.

Для достижения поставленной цели решались следующие **задачи**:

1. Вывести правила отбора для импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света на двухмагнанных модах.
 2. Определить уравнение движения для когерентной динамики спиновых корреляций.
 3. Вывести рамановский тензор и его дисперсию для двухмагнанных мод.
 4. Получить спектры двухмагнанных мод для случаев спонтанного и импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света.
- Выявить физические причины различий в полученных спектрах.

Научная новизна: Получены правила отбора для терагерцевой лазерно-индуцированной динамики спиновых корреляций в кубических гейзенберговских антиферромагнетиках. Обнаружено, что амплитуда и фаза осцилляции спиновых корреляций определяются поляризацией возбуждающего лазерного импульса. Продemonстрировано, что получаемые правила отбора связаны с взаимной ориентацией электрического поля импульса и связи между ближайшими магнитными соседями. Показано возникновение осцилляций диэлектрической проницаемости, связанных с

динамикой спиновых корреляций за счет магнитной рефракции. Продемонстрировано, что подобная динамика возможна в отсутствие осцилляций макроскопических параметров порядка.

Разработан оригинальный теоретический подход к описанию возбуждения, динамики и детектирования двухмагнитных мод в экспериментах по импульсному вынужденному комбинационному рассеянию света, основанный на псевдовекторе спиновых корреляций. Данный подход позволяет получать аналитические выражения правил отбора для двухмагнитных мод, и применим для различных типов кристаллических структур. Определен характер уравнения движения для псевдовекторов спиновых корреляций, которое определяет динамику двухмагнитных мод. Впервые показано, что для возбуждения двухмагнитных мод сверхкороткими лазерными импульсами существует оптимальная длительность импульса, которая связана с частотой возбуждаемой моды.

Проведено сравнение спектров двухмагнитных мод, возбужденных за счет спонтанного и импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света. Представлен теоретический подход позволяющий описывать оба процесса в рамках одних функций Грина для двухмагнитных мод. Получены соответствующие весовые коэффициенты для спектров, выраженные через рамановский тензор. Определена дисперсия рамановского тензора для двухмагнитных мод.

Теоретическая и практическая значимость. Практическая значимость заключается в установлении правил отбора для возбуждения и детектирования терагерцевой динамики спиновых корреляций лазерными импульсами, а также оптимальной длительности импульса накачки. Данный результат позволит определить наиболее подходящие параметры для проведения экспериментов по возбуждению и детектированию когерентных двухмагнитных мод в антиферромагнетиках. Кроме того, возникновение динамики спиновых корреляций на частоте двухмагнитных мод является индикатором лазерно-индуцированных изменений обменного взаимодействия, и поэтому важно для исследования оптических методов управления магнитным порядком.

Теоретическая значимость полученных результатов заключается в создании формализма псевдовекторов спиновых корреляций, позволяющего описывать динамику двухмагнитных мод и их взаимодействие со светом. Полученное для этих псевдовекторов уравнение движения показало отсутствие инерции, что значительно отличается от динамики антиферромагнитного вектора в центре зоны Бриллюэна, описываемой уравнением второго порядка. Продемонстрировано, что динамика спиновых корреляций на частоте двухмагнитных мод не может быть описана в рамках антиферромагнитного вектора и намагниченности. Используя полученный формализм, описано различие спектров двухмагнитных мод в случае возбуждения когерентной и некогерентной динамики спиновых корреляций.

Таким образом, теоретическая значимость полученного формализма заключается в следующем:

1. Продемонстрировано применение спиновых корреляций для описания когерентной терагерцевой магнитной динамики в кубических антиферромагнетиках. Спиновые корреляции описывают динамику на частотах двухмагнонных мод, которая не может быть описана в рамках антиферромагнитного вектора и намагниченности.
2. Проанализировано уравнение движения, описывающее двухмагнонную моду. Получены соотношения для оптимальной длительности возбуждающего двухмагнонные моды лазерного импульса.
3. Получена дисперсия рамановского тензора для двухмагнонных мод. На основе рамановского тензора выведены весовые коэффициенты для спонтанного и импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света. Описано различие во взаимодействии электрического поля лазерных импульсов с разными двухмагнонными модами.

Методология и методы исследования. Описание магнитной подсистемы антиферромагнетика выполнено в рамках модели Гейзенберга. С использованием преобразования Гольштейна-Примакова проведена бозонизация спиновой системы. Взаимодействие электрического поля световой волны с антиферромагнетиком описано через электронную модель Хаббарда. С помощью преобразования Шриффера-Вольфа построена связь между магнитной и электронной подсистемами. Для получения отклика системы на возмущение лазерным импульсом был использован формализм двухвременной функции Грина. В данной работе рассмотрение двухмагнонных мод проведено без учёта магнон-магнонного рассеяния, однако основные выводы полученные в работе касаются симметричных аспектов возбуждения и детектирования спиновой динамики и останутся верны в случае учёта этого рассеяния. Для построения дисперсионных соотношений и динамики спиновых корреляций был произведен численный расчет с использованием языка программирования Python.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. В кубических диэлектрических гейзенберговских антиферромагнетиках возмущение обменного взаимодействия линейно поляризованными фемтосекундными лазерными импульсами индуцирует динамику спиновых корреляций, амплитуда и фаза которой зависит от поляризации импульса по отношению к ориентации связи между ближайшими магнитными соседями. Частотный спектр наблюдаемой динамики соответствует спектру двухмагнонных мод.
2. В рассматриваемых антиферромагнетиках в отсутствие магнитной анизотропии лазерно-индуцированная динамика спиновых

корреляций на частоте двухмагнонных мод не вызывает продольных или поперечных осцилляций антиферромагнитного вектора, однако проявляется в динамической анизотропной модуляции диэлектрической проницаемости в оптическом диапазоне.

3. Движение псевдовектора спиновых корреляций, связанных с двухмагнонными модами, описывается дифференциальным уравнением первого порядка, что показывает отсутствие инерции у соответствующей динамики и задаёт оптимальную длительность возбуждающего импульса, сравнимую с $1/4$ периода двухмагнонной моды на краю зоны Бриллюэна.
4. Относительное уширение и сдвиг спектров импульсного вынужденного и спонтанного комбинационного рассеяния света на двухмагнонной моде, обнаруженные в экспериментальных работах, связаны с когерентным характером мод, наблюдаемых в случае импульсного вынужденного рассеяния, и чувствительностью этой методики к амплитуде и фазе динамики спиновых корреляций.

Достоверность полученных результатов обеспечивается согласием полученных теоретических и численных результатов с экспериментальными данными, представленными в научных работах. Результаты работы находятся в согласии с имеющимися в литературе данными.

Апробация работы. Результаты работы докладывались лично автором на семинарах лаборатории Физики ферроиков ФТИ им. А.Ф. Иоффе, на Низкоразмерном семинаре ФТИ им. А. Ф. Иоффе, на конкурсе научных работ молодых учёных ФТИ 2024 года (1-е место), на научных семинарах кафедры Спектроскопии твёрдых тел и интерфейсов Университета Радбауд (г. Наймеген), а также на российских и международных научных конференциях и симпозиумах:

1. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова. "Selection rules for ultrafast laser excitation and detection of spin correlations in an antiferromagnet". Стендовый доклад. Ultrafast Magnetism Conference, Nancy, France, 12-16 сентября 2022 г.
2. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова. "Лазерно-индуцированное изменение обменного взаимодействия и ТГц динамика спиновых корреляций в кубических антиферромагнетиках". Устный доклад. Заседание секции «Магнетизм» Научного Совета РАН по физике конденсированных сред. 8 декабря 2022 г., онлайн.
3. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова. "Laser-induced two-magnon dynamics in Heisenberg antiferromagnets". Стендовый доклад. Международный симпозиум "Нанозифика и нанозлектроника", 14 марта 2022 г., онлайн.
4. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова, "Лазерно-индуцированная когерентная спиновая динамика в анизотропных антиферромагнетиках". Устный доклад. XXXII Всероссийская

- школа-семинар «Волновые явления: физика и применения» имени А.П. Сухорукова, онлайн, 06-11 июня 2021 г.
5. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова, “Ultrafast excitation and detection of laser-driven two-magnon dynamics in a Heisenberg antiferromagnet with anisotropy”. Стендовый доклад. UltrafastLight-2021, Москва, 04-08 октября 2021 г.
 6. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова, “Лазерно-индуцированное изменение обменного взаимодействия и ТГц когерентная спиновая динамика в антиферромагнетиках”. Стендовый доклад. Международная конференция Физика.СПб-2021, Санкт-Петербург, 18-22 октября 2021 г.
 7. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова, “Selection rules and equation of motion for laser-driven THz spin correlations in an antiferromagnet”. Стендовый доклад. GRC Spin dynamics in nanostructures, Les Diablerets, Switzerland, 9-14 июля 2023 г.
 8. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова. "Лазерно-индуцированная ТГц динамика спиновых корреляций в кубических антиферромагнетиках". Устный доклад. Международный симпозиум “Нанофизика и нанoeлектроника”, Нижний Новгород, 16 марта 2023 г.
 9. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова, “Спектры двухмагнонных мод в кубических антиферромагнетиках при спонтанном и импульсном стимулированном комбинационном рассеянии света”. Стендовый доклад. Международная конференция Физика.СПб-2024, Санкт-Петербург, 14 октября 2024 г.
 10. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова, “Laser-induced THz dynamics of spin correlations in cubic antiferromagnets”. Устный доклад. Spin Waves International Symposium “Spin Waves-2024”, Саратов, 27 августа 2024 г.
 11. А.Е. Федянин, J.H. Mentink, А.М. Калашникова, “Laser-induced THz spin correlation dynamics in cubic antiferromagnets”. Устный доклад. The International Summer Conference on Theoretical Physics 2024, Санкт-Петербург, 17 июнь 2024 г.

Личный вклад. Защищаемые результаты диссертационной работы получены соискателем лично. Вклад автора в получение всех теоретических результатов, их обработку и описание, а также в написание статей является определяющим. Соискателем разработан формализм псевдовекторов спиновых корреляций, позволяющий описывать терагерцевую магнитную динамику в кубических антиферромагнетиках. Автор принимал активное участие в подготовке докладов по результатам работы и лично представлял их на научных конференциях и семинарах. Постановка

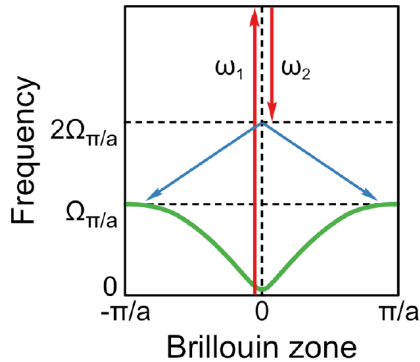


Рис. 1 — Схематичное представление спонтанного комбинационного рассеяния света на двухмагнонной моде. Фотон с частотой ω_1 возбуждает пару магнонов с противоположными волновыми векторами. Зеленым цветом изображена дисперсия магнонов.

целей и задач выполнена соискателем совместно с научным руководителем и научным консультантом д-р J. H. Mentink (Университет Радбауд).

Публикации. Основные результаты по теме диссертации изложены в трёх статьях в журналах, индексируемых в базах данных Web of Science, Scopus, РИНЦ и в одиннадцати тезисах докладов.

Содержание работы

Во **введении** обосновывается актуальность исследований, проводимых в рамках данной диссертационной работы, формулируется цель, ставятся задачи работы, излагается научная новизна и практическая значимость представляемой работы. В последующих главах приводится обзор научной литературы по изучаемой проблеме, вводятся правила отбора для возбуждения и детектирования двухмагнонных мод с помощью сверхкоротких лазерных импульсов, вводится принципиально новый подход к описанию двухмагнонной динамики, а также проведено сравнение спектров при спонтанном и импульсном вынужденном рамановском рассеянии света на двухмагнонных модах.

Первая глава содержит обзор литературы по основным механизмам лазерно-индуцированного возбуждения динамики спиновых корреляций и методам их детектирования. Представлены работы по спонтанному и импульсному вынужденному комбинационному рассеянию света на двухмагнонных модах [Рис. 1]. Приведен обзор теоретических методик,

используемых описания двухмагнанных мод в гейзенберговских антиферромагнетиках. Показана зависимость тензора диэлектрической проницаемости от спиновых корреляций. Рассмотрено влияние электрического поля лазерного импульса на обменное взаимодействие.

В разделе **1.1** представлено описание магнитной подсистемы антиферромагнетиков. Рассмотрен набор преобразований, позволяющий перейти от скалярного произведения операторов спина, встречающееся в гейзенберговской модели и спиновых корреляциях [1], к комбинациями операторов рождения и уничтожения [2], составляющих двухмагнанные операторы [3]. Показано, что в базисе двухмагнанных операторов гамильтониан принимает вид, соответствующий гармоническому осциллятору [4], что позволяет в дальнейшем рассчитывать динамику спиновых корреляций, используемых в качестве основного исследуемого параметра.

В разделе **1.2** рассмотрены механизмы возбуждения лазерно-индуцированной динамики спиновых корреляций. Подробно рассмотрено влияние виртуальных электронных переходов [Рис. 2 (a,b)] на магнитное упорядочение в диэлектрических антиферромагнетиках [5; 6]. Особое внимание уделено изменению обменного взаимодействия, являющемуся ключевым эффектом при возбуждении когерентных осцилляций спиновых корреляций на частотах двухмагнанных мод.

Раздел **1.3** посвящён влиянию спиновых корреляций на оптические параметры. Рассмотрен вклад спиновых корреляций в диэлектрическую проницаемость [7], проявляющийся в виде магнитной рефракции, т.е. изменение показателя преломления среды при переходе в антиферромагнитное состояние [8]. Продемонстрирована связь оптических свойств кристалла с ориентацией ближайших магнитных ионов и спиновыми корреляциями между ними.

Подробно лазерно-индуцированное изменение обменного взаимодействия рассмотрено в разделе **1.4**. Представлено лазерно-индуцированное возмущение в рамках модели Гейзенберга [6; 9]. Показано, что поляризация импульса накачки определяет направление вдоль которого происходит изменение обменного взаимодействия.

Вторая глава посвящена теоретическому описанию спиновой динамики, возбуждаемой за счёт лазерно-индуцированного возмущения обменного взаимодействия, а также её детектированию. Рассчитаны спиновые корреляции для ближайших соседей в случае простой гейзенберговской модели для кубического антиферромагнетика без магнитной анизотропии. Показано, что динамика спиновых корреляций возбуждается на частотах двухмагнанных мод линейно поляризованными фемтосекундными лазерными импульсами. Проанализированы эффекты от возникающей динамики спиновых корреляций на макроскопические характеристики системы, такие как диэлектрическая проницаемость и антиферромагнитный

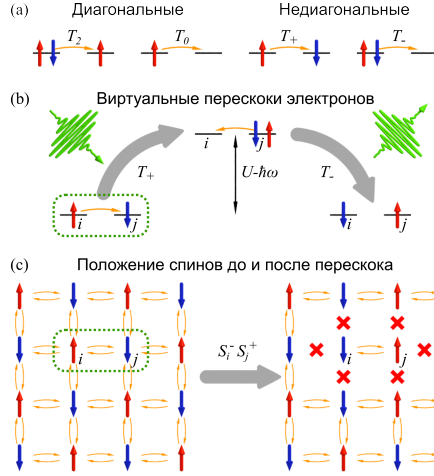


Рис. 2 — (a) Иллюстрация диагональных и недиагональных перескоков электронов в модели Хаббарда, соответствующих $\hat{T}_2, \hat{T}_0$ и $\hat{T}_+, \hat{T}_-$, соответственно. (b) Взаимный перескок электронов между двумя узлами, возбуждаемый фотоном с энергией $\hbar\omega$. (c) Схематическая иллюстрация спиновой динамики, индуцированной накачкой, и связанного с этим изменения диэлектрического отклика решетки 4×4 , находящейся изначально в нееелевском состоянии (левая панель). На правой панели изображено состояние системы после взаимного перескока электронов на узлах i и j . В результате образуется состояние с запрещенными взаимными перескоками электронов между отдельными узлами. Этот запрет перескоков влияет на взаимодействие электрического поля пробирующего импульса света с системой, делая ее различной для импульсов поляризованных вдоль различных направлений в кристалле.

вектор. Показано, что лазерно-индуцированная динамика спиновых корреляций для ближайших соседей проявляется на макромасштабе в виде индуцированной оптической анизотропии [Рис. 2 (c)]. Получены поляризационные зависимости для модуляции зондирующего импульса на частоте двухмагнной моды.

Подробное описание схемы рассматриваемых экспериментов по ИВ-КРС на двухмагнной моде [Рис. 3] представлено в разделе **2.1**. В исследуемой схеме эксперимента используется два линейно поляризованных лазерных импульса (накачки и зондирования), обладающие длительностью порядка фемтосекунд и несущей частотой, соответствующей длине волны порядка 1 мкм. В качестве материала рассматривается кубический диэлектрический гейзенберговский антиферромагнетик прозрачный для импульсов накачки и зондирования и обладающий слабо магнитной анизотропией. Примерами такого материала являются KNiF_3 и RbMnF_3 .

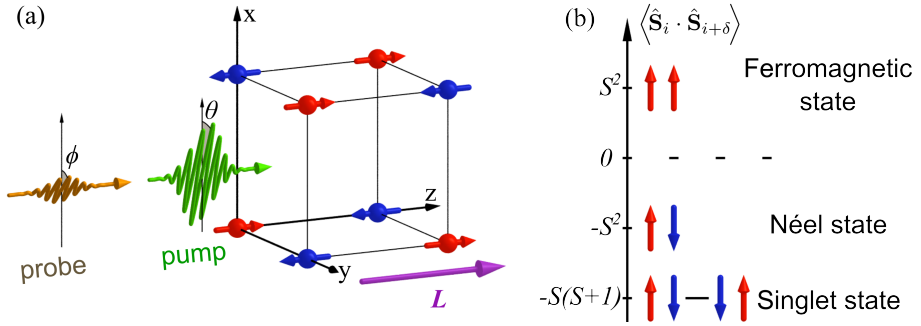


Рис. 3 — (a) Иллюстрация модельной установки. Магнитные ионы формируют (красные и синие) антиферромагнитно связанные подрешетки. $\mathbf{L}$ - классический антиферромагнитный вектор. Электрические поля падающих импульсов накачки и зондирования составляют углы θ и ϕ относительно оси x , соответственно. Лазерно-индуцированные изменения поляризации $\Delta\phi(t)'$ и эллиптичности $\Delta\phi(t)''$ зондирующего импульса после прохождения через образец считаются измеряемыми величинами. (b) Схематическая диаграмма, иллюстрирующая значения спиновых корреляций в ферромагнитном, классическом антиферромагнитном (неелевском) и синглетном антиферромагнитном состояниях.

Также в данном разделе рассмотрено равновесное состояние спиновых корреляций и их связь с длиной антиферромагнитного вектора. Получены соотношения для лазерно-индуцированной динамики двухмагнанных операторов и соответствующей динамики спиновых корреляций. Показано, что динамика спиновых корреляций представляет собой осцилляции на частотах двухмагнанных мод относительно равновесного положения.

$$\Delta\langle\hat{\mathbf{S}}_i(t) \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta}(t)\rangle \propto \Delta J \sum_{\mathbf{k}} v(\mathbf{k}, \delta) \sigma_{\mathbf{k}} \sin(2\Omega_{\mathbf{k}} t), \quad (1)$$

где $\Omega_{\mathbf{k}}$ – частота магнона, $\sigma_{\mathbf{k}} = \sqrt{\pi\tau_p} e^{-\Omega_{\mathbf{k}}^2 \tau_p^2}$, τ_p – длительность лазерного импульса накачки, $v(\mathbf{k}, \delta)$ – геометрический параметр.

В разделе **2.2** описаны результаты численного расчета лазерно-индуцированной магнитной динамики и оптических параметров. В частности, представлена динамика спиновых корреляций [Рис. 4] и её зависимость от поляризации импульса накачки. Показано, что в силу высокой симметрии рассматриваемых антиферромагнетиков, осцилляции длины антиферромагнитного вектора отсутствуют. Магнитная анизотропия способна нарушить симметрию и привести к осцилляциям антиферромагнитного вектора, однако их частоты соответствуют магнонам в центре зоны Бриллюэна, т.е. гораздо ниже основной частоты двухмагнанных мод. При этом

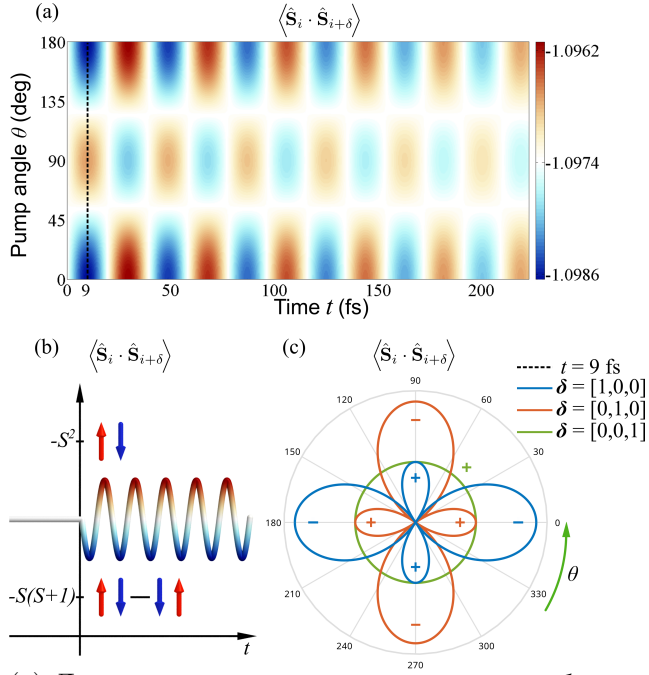


Рис. 4 — (a) Динамика спиновых корреляций между ближайшими соседями вдоль оси x в зависимости от угла поляризации импульса накачки θ . Расчеты проведены при обменном взаимодействии $J = 8.8$ мэВ, температуре $T = 0$ К, лазерно-индуцированном возмущении $\Delta J = 0.008J$ и длительности накачки $2\tau_p = 10$ фс. (b) Схематическая картина колебаний на шкале спиновых корреляций для связи, вдоль которой был поляризован импульс накачки. (c) Спиновые корреляции при $t = 9$ фс после воздействия импульса накачки в зависимости от его угла поляризации θ для ближайших соседей по x -, y - и z -связи. $\pm$ указывают на начальную фазу осцилляций.

обнаружено, что компоненты тензора диэлектрической проницаемости осциллируют в соответствии со спиновыми корреляциями, что приводит к модуляции зондирующего импульса. Амплитуда и фаза осцилляций эллиптичности пробующего импульса оказываются связаны с поляризацией импульса накачки [Рис. 5].

В разделе **2.3** проведено сравнение полученных в главе результатов с экспериментальными данными, представленными в литературе. Для KNiF_3 проведена оценка модуляции оптических параметров при лазерно-индуцированном изменении обмен. интеграла 1%. Помимо качественного соответствия экспериментальным данным [3], проявляющегося в идентичных поляризационных зависимостях, было получено и количественное

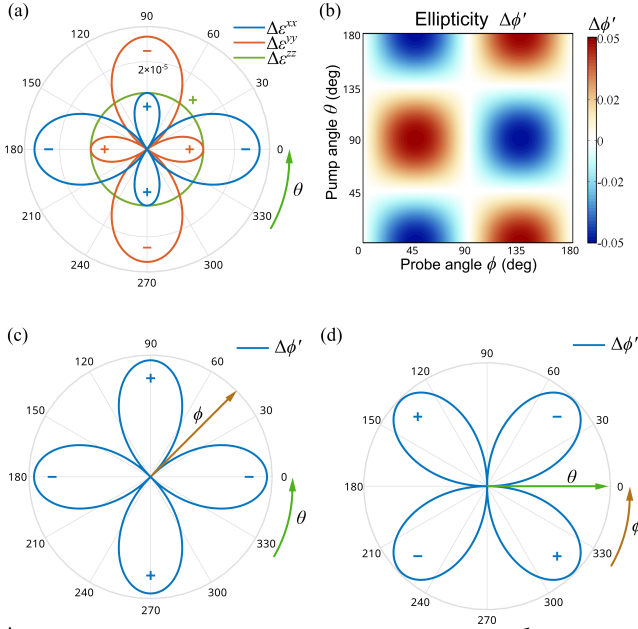


Рис. 5 — Амплитуда лазерно-индуцированных колебаний компонент тензора диэлектрической проницаемости (a) и эллиптичности зондирующего импульса $\Delta\phi'(t)$ (b) в зависимости от поляризации накачки и пробирования. (c) и (d) представлены сечения карты эллиптичности, (c) при фиксированной поляризации зондирующего импульса вдоль диагонали тела ($\phi = 45^\circ$) и (d) при фиксированной поляризации импульса накачки вдоль оси x ($\theta = 0$). Знаки на панелях (a,c,d) и цвета на панелях (b) обозначают начальную фазу колебаний.

соответствие эллиптичности зондирующего импульса. Симметричный анализ также показывает применимость представленной модели к некоторым тетрагональным материалам, таким как MnF_2 , FeF_2 [10; 11].

В третьей главе представлен формализм, позволяющий описать возбуждение, динамику и детектирование двухмаглонной моды с помощью построенного псевдовектора спиновых корреляций и эффективных полей обменного взаимодействия. Также для дополнительной верификации спин-корреляционного подхода в описании сверхбыстрой лазерно-индуцированной магнитной динамики представлено сравнение результатов расчётов с экспериментальными результатами по RbMnF_3 .

В разделе **3.1** введено определение псевдовектора спиновых корреляций и описаны его основные свойства.

$$\begin{aligned}\hat{C}_{\mathbf{k}}^X &= \frac{1}{2S} \left(\hat{S}_{\mathbf{k}}^x \hat{S}_{-\mathbf{k}}^x + \hat{S}_{\mathbf{k}}^y \hat{S}_{-\mathbf{k}}^y \right); \\ \hat{C}_{\mathbf{k}}^Y &= \frac{1}{2S} \left(\hat{S}_{\mathbf{k}}^x \hat{S}_{-\mathbf{k}}^y - \hat{S}_{\mathbf{k}}^y \hat{S}_{-\mathbf{k}}^x \right); \\ \hat{C}_{\mathbf{k}}^Z &= \frac{1}{2} \left(2S + 1 - \hat{S}_{\mathbf{k}}^z + \hat{S}_{-\mathbf{k}}^z \right),\end{aligned}\tag{2}$$

где XYZ – оси в гиперболическом пространстве. Данный псевдовектор диагонализует гамильтониан и позволяет далее записать уравнение движения и рамановский тензор.

В разделе **3.2** приводится уравнение движения для псевдовектора спиновых корреляций. Используя выражение для псевдовектора эффективного поля обменного взаимодействия $\mathbf{B}_{\mathbf{k}}$ и гамильтониана $\hat{H}_{2M} = -\sum_{\mathbf{k}} \mathbf{B}_{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}$, записанное через спиновые корреляции, получено уравнение движения

$$\hbar \frac{\partial \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}}{\partial t} - \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}} \times \mathbf{B}_{\mathbf{k}} = 0.\tag{3}$$

Показано, что эффективное поле обменного взаимодействия представляет собой сумму полей от каждого ближайшего магнитного соседа [Рис. 6(a)]. Таким образом, эффективное поле обменного взаимодействия отражает структуру магнитной подрешетки. При этом, по аналогии с классическими задачами об эффективном поле, оно имеет длину, соответствующую частоте прецессии псевдовектора спиновых корреляций, хоть и выраженную в неевклидовой метрике. Особенностью данного представления является разделение вкладов в энергию спиновой динамики от каждого отдельного соседа, что значительно упрощает дальнейшее рассмотрение поляризационных зависимостей для возбуждения и детектирования двухмагнетонной динамики, которые были получены Главе 2 только численно.

Раздел **3.3** посвящен возбуждению и детектированию динамики псевдовектора спиновых корреляций. Показано, что лазерно-индуцированное изменение обменного взаимодействия может быть представлено через возникновение дополнительного вклада в эффективное поле обменного взаимодействия. При этом, изменяющееся слагаемое эффективного поля определяется поляризацией лазерного импульса накачки [Рис. 6(b)]. Аналогичным образом проявляется связь псевдовектора спиновых корреляций с диэлектрической проницаемостью, что позволяет получить аналитическое выражение для правил отбора ИВКРС на двухмагнетонных модах. Эллиптичность зондирующего импульса зависит от поляризации импульсов

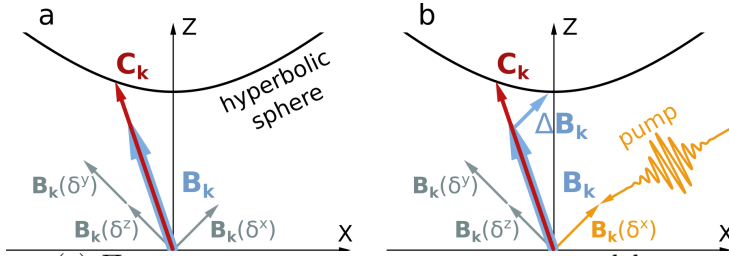


Рис. 6 — (a) Псевдовектор спиновых корреляций и эффективное поле обменного взаимодействия для одного из волновых векторов. Аналогично намагниченности в ферромагнетиках, конец псевдовектора спиновых корреляций лежит на поверхности сферы. Эффективное поле обменного взаимодействия состоит из трех компонент, соответствующих связям ближайших магнитных ионов. (b) Схематичное изображение лазерно-индуцированного изменения эффективного поля обменного взаимодействия. Импульс накачки, поляризованный вдоль δ^x изменяет соответствующую компоненту поля $\mathbf{B}_k(\delta^x)$, приводя к кратковременному смещению эффективного поля $\Delta \mathbf{B}_k$, что приводит к возникновению прецессии псевдовектора спиновых корреляций.

накачки и зондирования, но не связанна с ориентацией антиферромагнитного вектора

$$\Delta \phi' \propto \cos(2\theta) \sin(2\phi), \quad (4)$$

где θ и ϕ — поляризация импульса накачки и зондирования, соответственно.

Сравнение с экспериментальными данными по RbMnF_3 , представленное в раздел 3.4, показало, что как и в случае KNiF_3 , правила отбора действительно определяются ориентацией ближайших магнитных ионов, а не макроскопическими параметрами магнитного порядка. Кроме того, разработанная модель описывает линейный по интенсивности импульса накачки эффект, что также совпадает с результатами экспериментов. Данный результат сильно контрастирует с макроспиновыми приближениями, в которых возбуждение пар спиновых волн является квадратичным по отношению к интенсивности накачки.

Четвертая глава посвящена спектрам двухмагнанных мод при спонтанном и импульсном вынужденном комбинационном рассеянии света.

В данной главе, на основе расширенного псевдовекторного формализма спиновых корреляций, выводится аналитическое выражение для наблюдаемых в обоих типах экспериментов, с целью определить возможные фундаментальные различия между наблюдаемыми двухмагнанными спектрами. В качестве материала рассмотрены кубические антиферромагнетики, такие как KNiF_3 и RbMnF_3 . Обнаружено, что в обоих случаях

магноны с края зоны Бриллюэна вносят наибольший вклад в измеренные спектры. Однако существует разница в спектрах, которая вытекает из того факта, что КРС исследует заселенность континуума некогерентных мод, тогда как в случае импульсно возбуждаемых мод они когерентны, и влияние на измерения дает как амплитуда, так и фаза. Показано, что для континуума мод чувствительность к фазе приводит к относительно сдвигу основных пиков в двух спектрах, а спектр ИВКРС значительно расширяется и простирается в диапазон выше максимальной частоты двух-магнонной моды.

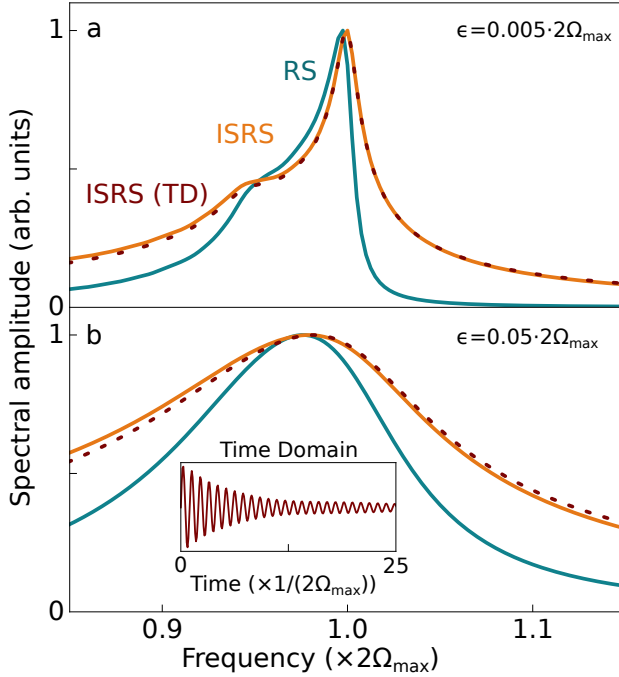


Рис. 7 — Спектры сечения КРС, рассчитанные с использованием уравнения (5) с $\alpha = \beta = x$ (голубая сплошная линия), амплитуда ИВКРС, рассчитанная с использованием уравнения (6) с $\nu = x$ (оранжевая сплошная линия), и амплитуда ИВКРС, рассчитанная как преобразование Фурье эллиптичности пробующего импульса (пунктирная линия). Параметры затухания: (а) $\epsilon = 0,005 \cdot 2\Omega_{\max}$ и (b) $\epsilon = 0,05 \cdot 2\Omega_{\max}$. На панели (b) показан спектр и динамика эллиптичности пробующего импульса, рассчитанная с $\epsilon = 0.05 \cdot 2\Omega_{\max}$.

В разделе [4.1](#) представлено расширение формализма псевдовекторов спиновых корреляций для дальнейшего сравнения экспериментов по

КРС и ИВКРС. В частности, описано преобразование для ориентации эффективного поля обменного взаимодействия в гиперболической системе координат, которое позволяет перейти в систему координат с эффективным полем вдоль оси Z . Также рассмотрена диэлектрическая восприимчивость в терминах эффективного поля, что позволило ввести рамановский тензор для каждой двухмаглонной моды. Конец раздела посвящен функции Грина от компонент псевдовектора спиновых корреляций.

В разделе **4.2** рассмотрены спектры комбинационного рассеяния света на двухмаглонной моде [Рис. 7]. Введены аналитические выражения для сечения рассеяния σ , рассматриваемого в экспериментах по КРС, и эллиптичности зондирующего импульса $\Delta\phi'$, измеряемого в экспериментах по ИВКРС ($\theta = 0^\circ, \phi = 45^\circ$). При этом обе величины выражены через компоненты рамановского тензора $\eta_{\mathbf{k}}$ и функции Грина от компонент псевдовектора спиновых корреляций $G(\hat{K}_{\mathbf{k}}^X, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X|\omega')$. В таком случае сечение КРС:

$$\sigma(\omega') \propto \text{Im} \sum_{\mathbf{k}} \eta_{\mathbf{k}}^{\alpha\alpha X}(\omega_I) \eta_{\mathbf{k}}^{\beta\beta X}(\omega_S) G(\hat{K}_{\mathbf{k}}^X, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X|\omega'); \quad (5)$$

$$\Delta\phi'(\omega') \propto f(\omega') \left| \sum_{\mathbf{k}} [\eta_{\mathbf{k}}^{xxX}(\omega_{pr}) - \eta_{\mathbf{k}}^{yyX}(\omega_{pr})] \eta_{\mathbf{k}}^{xxX}(\omega_p) G(\hat{K}_{\mathbf{k}}^X, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X|\omega') \right|. \quad (6)$$

Показано, что несмотря на схожесть физических процессов, изучаемых КРС и ИВКРС, компоненты рамановского тензора и функции Грина входят в выражения по разному. Образующиеся из компонент рамановского тензора весовые коэффициенты, имеют различные дисперсионные зависимости [Рис. 8], что определяет взаимодействие света с конкретными двухмаглонными модами.

В разделе **4.3** представлен сравнительный анализ спектров, полученных в предыдущем разделе. Представлены явные выражения для кубического кристалла, изображенные на сечении и поверхности первой зоны Бриллюэна на [Рис. 9]. Дисперсии рамановских тензоров и весовых коэффициентов подчеркивают важную особенность связи двухмаглонных мод со светом. Например, свет, поляризованный вдоль оси x , связывается с модой, образованной магнонами с $\mathbf{k}||x$, в два раза сильнее, чем с магнонами с $\mathbf{k}||z$ или y . Таким образом, избирательность, по крайней мере частичная, по волновому вектору магнона определяется поляризацией света, то есть возникает возможность определять направление волновых векторов возбуждаемых маглонных пар поляризацией света даже в кубическом магнитно изотропном материале.

Важно отметить, что в рассматриваемых материалах дисперсия магнонов вблизи границы зоны Бриллюэна оказывается практически плоской.

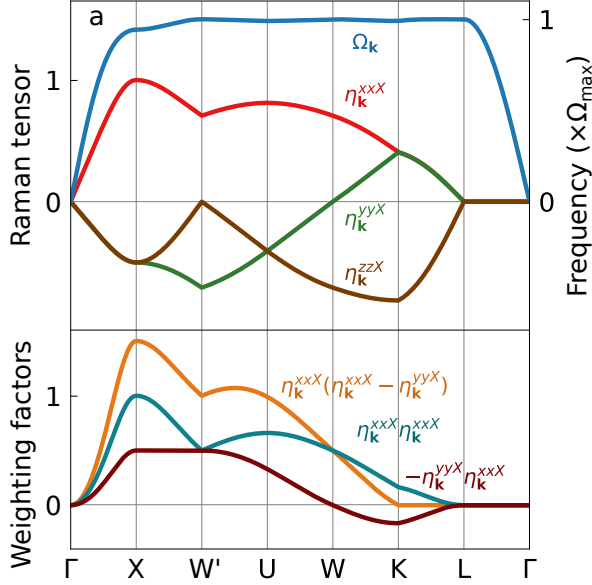


Рис. 8 — (а) Дисперсия магнонов (синяя линия) и дисперсия трех компонент рамановского тензора $\eta_k^{\nu\nu X}$, $\nu = x, y, z$. (б) Дисперсия весовых коэффициентов для КРС $\eta_k^{xxX}\eta_k^{xxX}$ (голубая линия), ИВКРС $\eta_k^{xxX}[\eta_k^{xxX} - \eta_k^{yyX}]$ (оранжевая линия) и их разность $-\eta_k^{yyX}\eta_k^{xxX}$ (коричневая линия).

В результате, избирательность по волновому вектору для различных поляризаций света при измерениях проявляется слабо. Другой причиной изменения в спектре можно считать когерентный характер возбуждений в случае ИВКРС. Измерение абсолютного значения от преобразования Фурье в ИВКРС приводит к более сложному характеру перекрытия между спектральными линиями двухмагнонных мод. Положение пиков при измерении абсолютного значения спектра смещается относительно пиков мнимой части спектра. Поскольку спектр ИВКРС на двухмагнонных модах содержит моды с различными силами осцилляторов, спектр асимметричен, и сдвиг пика самой высокой частоты наиболее явно выражен.

Полученные смещения спектров были сравнены с результатами [11; 12], где были напрямую сопоставлены двухмагнонные спектры, полученные в экспериментах КРС и ИВКРС. В [12] был исследован кубический гейзенберговский антиферромагнетик KNiF_3 , для которого представленная модель применима напрямую. В [11] были изучены более сложные тетрагональные антиферромагнетики FeF_2 и NiF_2 , имеющие структуру рутила. Примечательно, что обе работы сообщают о смещении максимумов

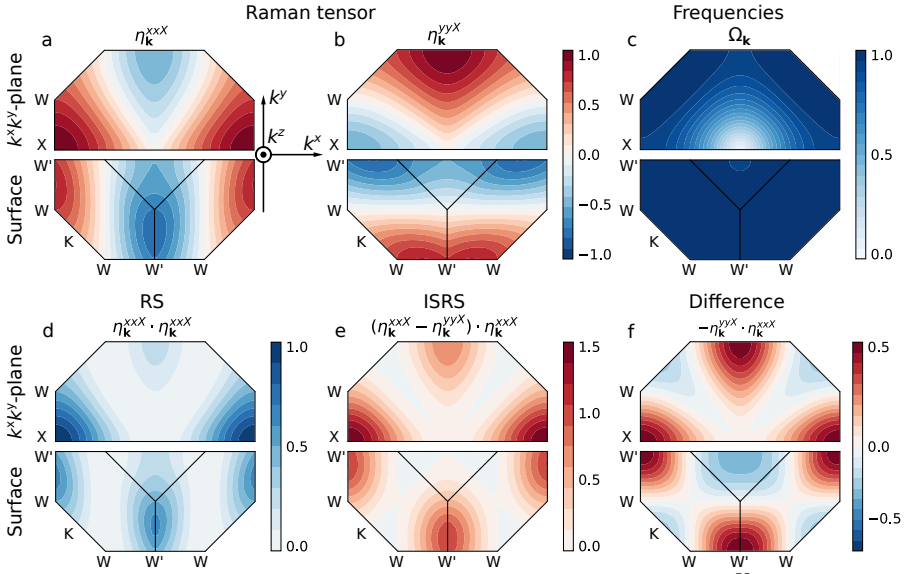


Рис. 9 — (a, b) Двухмагнанный рамановский тензор $\eta_{\mathbf{k}}^{\nu\nu X}$, $\nu = x, y$, и (c) нормированные частоты магнов $\Omega_{\mathbf{k}}/\Omega_{\text{max}}$ в плоскости $k^x k^y$ (верхние панели) и на поверхности первой зоны Бриллюэна (нижние панели). (d, e) Весовые коэффициенты для КРС и ИВКРС и (f) их разность в той же плоскости и на той же поверхности.

спектра ИВКРС относительно КРС, что находится в хорошем согласии с представленным теоретическим анализом.

В заключении приведены основные результаты работы, которые заключаются в следующем:

1. Возбуждение и детектирование терагерцевой динамики спиновых корреляций в кубических гейзенберговский антиферромагнетиках фемтосекундными лазерными импульсами определяется поляризацией импульсов относительно ориентации ближайших магнитных ионов. Воздействие электрического поля лазерного импульса приводит к изменению величины обменного взаимодействия, и может составлять порядка 1% для KNiF_3 при плотности энергии лазерного импульса порядка 10 мДж/см².
2. Лазерно-индуцированная сверхбыстрая динамика антиферромагнитного вектора требует наличия магнитной анизотропии и характеризуется частотами, соответствующими модам в окрестности центра зоны Бриллюэна. Таким образом, терагерцевая спиновая динамика в кубических антиферромагнетиках возможна даже без динамики макроскопических параметров магнитного порядка. При этом наблюдается модуляция оптических свойств материала за счёт эффекта магнитной рефракции.
3. Динамика спиновых корреляций, соответствующая двухмагнетонной моде, описывается дифференциальным уравнением первого порядка, что показывает отсутствие инерции, характерной для однородной динамики антиферромагнитного вектора. Также для возбуждения двухмагнетонных мод имеется характерная длительность возбуждения порядка 1/4 обратной частоты двухмагнетонной моды.
4. Спектры спонтанного комбинационного рассеяния света и импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света на двухмагнетонных модах обладают несколькими отличиями. Ширина спектра увеличивается, а положение пика смещается, что связано с когерентным характером двухмагнетонных мод, детектируемых в данном случае.

Публикации автора по теме диссертации

- A1. *Fedianin, A. E.* Selection rules for ultrafast laser excitation and detection of spin correlation dynamics in a cubic antiferromagnet / A. E. Fedianin, A. M. Kalashnikova, J. H. Mentink // Phys. Rev. B. — 2023. — Т. 107, № 14. — С. 144430.
- A2. Coherent THz spin dynamics in antiferromagnets beyond the approximation of the Néel vector / F. Formisano, T. T. Gareev, D. I. Khusyainov, A. E. Fedianin, R. M. Dubrovin, P. P. Syrnikov, D. Afanasiev, R. V. Pisarev, A. M. Kalashnikova, J. H. Mentink [и др.] // APL Mater. — 2024. — Т. 12, № 1. — С. 011105.

- A3. *Fedianin, A. E.* Spontaneous and impulsive stimulated Raman scattering from two-magnon modes in a cubic antiferromagnet / A. E. Fedianin, A. M. Kalashnikova, J. H. Mentink // Physical Review B. — 2024. — T. 110, № 17. — C. 174439.

Список литературы

1. *Elliott, R. J.* The effects of magnon-magnon interaction on the two-magnon spectra of antiferromagnets / R. J. Elliott, M. F. Thorpe // J. Phys. C: Solid State Phys. — 1969. — T. 2, № 9. — C. 1630. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3719/2/9/312>.
2. *Balucani, U.* Theory of two-magnon Raman scattering in the ordered region for cubic antiferromagnets / U. Balucani, V. Tognetti // Phys. Rev. B. — 1973. — T. 8, № 9. — C. 4247.
3. Laser-driven quantum magnonics and terahertz dynamics of the order parameter in antiferromagnets / D. Bossini [и др.] // Physical Review B. — 2019. — T. 100, № 2. — C. 024428.
4. *Cottam, M. G.* Theory of two-magnon Raman scattering in antiferromagnets at finite temperatures / M. G. Cottam // J. Phys. C: Solid State Phys. — 1972. — T. 5, № 12. — C. 1461. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3719/5/12/022>.
5. *MacDonald, A. H.* $\frac{t}{U}$ expansion for the Hubbard model / A. H. MacDonald, S. Girvin, D. t. Yoshioka // Physical Review B. — 1988. — T. 37, № 16. — C. 9753.
6. *Mentink, J. H.* Manipulating magnetism by ultrafast control of the exchange interaction / J. H. Mentink // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2017. — T. 29, № 45. — C. 453001. — URL: <https://doi.org/10.1088/1361-648x/aa8abf>.
7. *Kitamura, S.* Probing and controlling spin chirality in Mott insulators by circularly polarized laser / S. Kitamura, T. Oka, H. Aoki // Physical Review B. — 2017. — T. 96, № 1. — C. 014406.
8. Isotropic and anisotropic magnetic refraction of light in the antiferromagnets KNiF_3 , and RbMnF_3 / B. B. Krichevstov [и др.] // Sov. Phys. - JETP. — 1984. — T. 59, № 6. — C. 1316–1322. — URL: http://jetp.ras.ru/cgi-bin/dn/e_059_06_1316.
9. Ultrafast optical modification of exchange interactions in iron oxides / R. V. Mikhaylovskiy [и др.] // Nature Communications. — 2015. — T. 6, № 1. — C. 8190. — URL: <https://doi.org/10.1038/ncomms9190>.

10. Magnon Squeezing in an Antiferromagnet: Reducing the Spin Noise below the Standard Quantum Limit / J. Zhao [и др.] // Phys. Rev. Lett. — 2004. — Т. 93, вып. 10. — С. 107203. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.93.107203>.
11. Magnon squeezing in antiferromagnetic MnF_2 and FeF_2 / J. Zhao [и др.] // Phys. Rev. B. — 2006. — Т. 73, вып. 18. — С. 184434. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.73.184434>.
12. Macrospin dynamics in antiferromagnets triggered by sub-20 femtosecond injection of nanomagnons / D. Bossini [и др.] // Nat. Commun. — 2016. — Т. 7, № 1. — С. 10645. — URL: <https://doi.org/10.1038/ncomms10645>.

Федянин Анатолий Евгеньевич

Лазерно-индуцированная динамика
спиновых корреляций на частотах двухмагнонных мод
в кубических антиферромагнетиках

Автореф. дис. на соискание ученой степени канд. физ.-мат. наук

Подписано в печать _____._____._____. Заказ № _____

Формат 60×90/16. Усл. печ. л. 1. Тираж 80 экз.

Типография _____