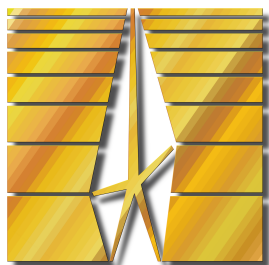


Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе
Российской академии наук



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»

Диссертация на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
PhD (приравниваемая в РФ к степени к.ф.-м.н.)
Калашникова Александра Михайловна,

Санкт-Петербург — 2025

Оглавление

	Стр.
Введение	5
Глава 1. Обзор литературы	14
1.1 Основное состояние антиферромагнетиков и двухмагнонная мода	19
1.1.1 Теория спиновых волн в антиферромагнетиках.	
Приближение Гольштейна-Примакова	20
1.2 Электродипольные переходы и спиновые корреляции	21
1.3 Влияние динамики спиновых корреляций на оптические	
параметры	24
1.4 Лазерно-индуцированное возмущение обменного взаимодействия .	26
 Глава 2. Правила отбора для сверхбыстрого оптического	
возбуждения и детектирования терагерцевой	
динамики спиновых корреляций в кубических	
антиферромагнетиках	29
2.1 Модель для описания динамики спиновых корреляций в	
антиферромагнетиках	30
2.1.1 Схема моделируемого эксперимента	30
2.1.2 Основное состояние и равновесные спиновые корреляции .	31
2.1.3 Динамика спиновых корреляций	33
2.2 Лазерно-индуцированная спиновая динамика и динамика	
оптических параметров	36
2.2.1 Осцилляции спиновых корреляций	37
2.2.2 Динамика антиферромагнитного вектора	39
2.2.3 Динамика диэлектрической проницаемости и	
поляризации зондирующего импульса	41
2.2.4 Влияние магнитной анизотропии	44
2.3 Сравнение с экспериментальными данными	47
2.3.1 Количественная оценка модуляции оптических	
параметров среды	48
2.3.2 Симметричный анализ	51
2.4 Основные выводы к Главе 2	54

Глава 3. Псевдовектор спиновых корреляций и его динамика . . .	57
3.1 Определение псевдовектора спиновых корреляций	58
3.2 Уравнение движения	59
3.3 Возбуждение и детектирование динамики псевдовектора спиновых корреляций	61
3.4 Сравнение с экспериментальными данными	65
3.5 Основные выводы к Главе 3	68
 Глава 4. Спектры двухмагнонных мод при спонтанном и импульсном вынужденном комбинационном рассеянии света	 70
4.1 Расширение формализма псевдовекторов спиновых корреляций на случай спектроскопии комбинационного рассеяния света . . .	71
4.1.1 Ориентация эффективного поля обменного взаимодействия в гиперболической системе координат . .	71
4.1.2 Диэлектрическая восприимчивость и рамановский тензор для двухмагнонных мод	73
4.1.3 Функция Грина для псевдовектора спиновых корреляций .	74
4.2 Спектры комбинационного рассеяния света на двухмагнонной моде	75
4.2.1 Спонтанное комбинационное рассеяние света	75
4.2.2 Импульсное вынужденное комбинационное рассеяние света	76
4.2.3 Особенности спектров комбинационного рассеяния света на двухмагнонных модах	78
4.3 Сравнительный анализ спектров	81
4.3.1 Дисперсия рамановского тензора двухмагнонной моды и весовых коэффициентов	81
4.3.2 Относительный сдвиг и уширение спектров КРС и ИВКРС	83
4.3.3 Сравнение с экспериментальными данными	85
4.4 Заключение к Главе 4	87
 Заключение	 89
 Публикации автора по теме диссертации	 92

Список литературы	92
-----------------------------	----

Введение

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 открыло возможность использовать широкий спектр импульсов для реализации импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света (ИБКРС), при котором в спектре света присутствуют частоты с разницей, соот-

ветствующей 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 двухмагنونные моды во временной области при импульсном возбуждении.

В настоящее время существует ряд экспериментальных работ по возбуждению когерентных двухмагنونных 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 двухмагنونных 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 двухмагنونных мод имеют отличия, что может быть связано как с особенностями методик, так и с более фундаментальными особенностями. Таким 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 двухмагنونных 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 двухмагنونных модах.
2. Определить уравнение движения для когерентной динамики спиновых корреляций.
3. Вывести рамановский тензор и его дисперсию для двухмагنونных 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. Продemonстрировано, что подобная динамика возможна в отсутствие осцилляций макроскопических параметров порядка.

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

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

периментов по возбуждению и детектированию когерентных двухмагнонных мод в антиферромагнетиках. Кроме того, возникновение динамики спиновых корреляций на частоте двухмагнонных 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 двухмагнонных 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 двухмагнонных моды не может быть описана в рамках антиферромагнитного вектора и намагниченности. Используя полученный формализм, описано различие спектров двухмагнонных 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 преобразование 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 вынужденно-

го 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 "Нанофизика и наноэлектроника", 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 “Наноп физика и наноэлектроника”, 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 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.

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, 4 глав и заключения. Полный объём диссертации составляет 99 страниц, включая 16 рисунков и 2 таблицы. Список литературы содержит 75 наименований. Основная часть работы имеет следующую структуру:

Глава 1 содержит обзор литературы по основным механизмам лазерно-индуцированного возбуждения динамики спиновых корреляций и методам их детектирования. Приведен обзор теоретических методов описания двухмагнетонных мод в гейзенберговских антиферромагнетиках. Показана зависимость тензора диэлектрической проницаемости от спиновых корреляций. Рассмотрено влияние электрического поля лазерного импульса на обменное взаимодействие.

Глава 2 посвящена получению правил отбора для возбуждения и детектирования терагерцевой динамики спиновых корреляций при помощи сверхбыстрых лазерных импульсов. Описано основное состояние и равновесные значения спиновых корреляций в антиферромагнетиках. Изучена динамика спиновых корреляций при возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами. Показаны особенности динамики антиферромагнитного вектора в присутствии и отсутствии магнитной анизотропии. Определена динамика диэлектрической проницаемости, которая приводит к возникновению эллиптичности зондирующего лазерного импульса, за счет магнитного двулучепреломления. Используя полученные соотношения, рассчитаны количественные значения изменения обменного взаимодействия и эллиптичности зондирующего лазерного импульса при возбуждении спиновой динамики в кубическом антиферромагнетике KNiF_3 , а также проведено сравнение полученных результатов с экспериментальными данными, представленными в статьях по возбуждению и детектированию двухмагнетонных мод. Оценена применимость полученных результатов в отношении кристаллов тетрагональной решеткой.

В **Главе 3** описан оригинальный подход к описанию двухмагнетонной динамики с помощью псевдовекторов в гиперболическом пространстве. Представлен новый подход к описанию спиновой динамики в антиферромагнетиках, использующий псевдовектор, составленный из различных компонент спиновых

корреляций. Представлен гамильтониан, выраженный через псевдовектор спиновых корреляций и эффективное поле обменного взаимодействия. Получено соответствующее уравнение движения, которое оказалось дифференциальным уравнением первого порядка, что указывает на отсутствие инерции. Описано лазерно-индуцированное возбуждение системы через изменение эффективного поля обменного взаимодействия. На основе псевдовекторного формализма и соотношений для диэлектрической проницаемости из Главы 1 получены аналитические выражения для правил отбора в явном виде. Сравнение с экспериментальными данными в RbMnF_3 показало, что правила отбора зависят от ориентации ближайших магнитных ионов, а не от ориентации антиферромагнитного вектора, что согласуется со спин-корреляционным подходом к описанию двухмагнонной моды.

Глава 4 посвящена особенностям спектров двухмагнонных мод, получаемых в экспериментах по спонтанному и импульсному вынужденному комбинационному рассеянию света. Используя формализм псевдовекторов спиновых корреляций выражены компоненты тензора диэлектрической восприимчивости и проницаемости, связанные с магнитным упорядочением в системе. Получена функция Грина от компоненты псевдовектора спиновых корреляций. Рассчитана дисперсия рамановского тензора, используя эффективное поле обменного взаимодействия. Представлены аналитические выражения для сечения КРС и эллиптичности зондирующего лазерного импульса при ИВКРС через компоненты псевдовектора спиновых корреляций и рамановского тензора. Обнаружены отличия в спектрах, связанные с когерентностью и некогерентностью двухмагнонных возбуждений в случае ИВКРС и КРС, соответственно. Показано относительное уширение и сдвиг спектра двухмагнонных мод в случае импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света. Полученные особенности находятся в согласии с данными, полученными в экспериментальных работах.

В **Заключении** приведены выводы диссертационной работы.

Глава 1. Обзор литературы

Возможность переключать ферроики [1] между двумя и более стабильными состояниями является ключевым свойством используемым в технологиях хранения информации. Ферромагнетики и сегнетоэлектрики – примеры ферроиков, которые уже нашли применение в устройствах хранения данных [2–4]. Другим перспективным применением ферро- и антиферромагнетиков является создание логических элементов на основе спиновых волн [5; 6]. Впервые спиновые волны были введены *Блохом* в 1932 [7]. Значительный прогресс в теории спиновых волн, в частности введение преобразований операторов спинов к бозонным операторам, был получен в работах *Гольштейна* и *Примакова* [8] и *Дайсона* [9]. Однако, как в накопителях данных, так и в спинволновых логических элементах в основном используются ферромагнетики, характерные частоты в которых составляют гигагерцы, что ограничивает быстродействие приборов. Увеличить частоту возможно за счет выбора материалом с иным типом магнитного упорядочения, например антиферромагнетиков, где частоты магнитной динамики определяются не магнитной анизотропией, а обменным взаимодействием, величины которого на порядки выше. При этом, главное преимущество антиферромагнетиков – большие частоты приводит к возникновению новых задач о возбуждении и детектировании магнитной динамики.

Существует несколько методов для зондирования магнитного порядка в антиферромагнетиках, среди которых дифракция нейтронов играет главную роль [10]. Также эффективным подходом к исследованию магнитного упорядочения является использование различных оптических методик. КРС позволяет обнаружить характерные для антиферромагнетиков возбуждения [11; 12]. Магнитное оптическое двулучепреломления [13; 14] и генерация второй гармоники [15] позволяют детально изучать доменную структуру антиферромагнетиков. В случае сверхбыстрых процессов и необходимости сканирования по пространству оптические методики зондирования оказываются незаменимыми. В частности, для возбуждения магнитной динамики используется ИВКРС, а для детектирования различные типы оптического двулучепреломления [16].

В ряде теоретических работ был разработан базис для описания ИВКРС на магнитных модах в диэлектриках и детектирования последующей динамики. В статье [17] впервые был представлен метод вычисления парамет-

ров, характеризующих эволюцию низкоэнергетических магнитных состояний в случае многозонной модели Хаббарда при типичном для лазерного излучения зависящем от времени электростатическом возмущении. А уже в работе [18] был проведен полноценный теоретический анализ вклада от кирального и некирального магнитного упорядочения в оптические свойства моттовских диэлектриков. Тем временем в работе [19] показано, как свет способен менять состояние фрустрированных моттовских диэлектриков, создавая киральные спиновые жидкости. Также было показано, что оптическое воздействие на антиферромагнетики может быть описано как лазерно-индуцированное изменение обменного взаимодействия [20—22], что представляет особый интерес, в силу того, что обменное взаимодействие является ведущим взаимодействием в магнитоупорядоченных твердых телах, его знак и сила определяют тип магнитного упорядочения, температуру магнитных переходов и дисперсию коллективных магнитных возбуждений – магнонов. Таким образом, указанные работы дали возможность описывать возникающее в результате воздействия электрического поля лазерного импульса изменение обменного взаимодействия, индуцирующее магнитную динамику в системе, и детектирование последующих изменений в оптических свойствах антиферромагнетика.

Помимо представленных теоретических моделей существует весомое количество экспериментальных работ, подтверждающих возможность оптического управления обменным взаимодействием. В работах [23; 24] было показано, что сверхбыстрое установление ферромагнитного упорядочения в металлическом FeRh может быть достигнуто путем перевода материала из антиферромагнитного в ферромагнитное состояние с использованием фемтосекундных оптических импульсов. Эксперименты по возбуждению фемтосекундными лазерными импульсами LaMnO_3 показали аномально сильную связь между когерентными возбуждениями решетки и обменным взаимодействием [25]. Данные результаты подчеркнули возможность сверхбыстрого непрямого воздействия лазерного импульса на спиновую систему за счет упругих деформаций решетки. В работе [26] было показано, что сверхбыстрой динамикой d–f обменного взаимодействия между электронами зоны проводимости и спинами решетки в EuTe также возможно управлять с помощью оптических методик. В работах [27—29] были представлены экспериментальные данные о модуляции обменного взаимодействия за счет электрического поля фемтосекундных лазерных импульсов.

Однако, приведенные работы описывают, в основном, возбуждения вблизи центра зоны Бриллюэна, что означает относительно большие длины спиновых волн (порядка микрометров) [30], и частоты, характеризующиеся не только сильным обменным взаимодействием, но и гораздо более слабым спин-орбитальным. С другой стороны частота магнонов на границе зоны Бриллюэна определяется в основном обменным взаимодействием и лежит в ТГц области. Однако, в силу относительно малого волнового вектора света, возбуждение магнонов на границе зоны напрямую оказывается практически невозможным. Одним из вариантов, позволяющим преодолеть это ограничение является возбуждение двухмагнонных мод, представляющих из себя парное возбуждение магнонов в антиферромагнетиках с противоположными волновыми векторами. В таком случае суммарный волновой вектор моды оказывается равен нулю, что разрешает взаимодействие моды со светом посредством комбинационного рассеяния [Рис. 1.1]. Спонтанное комбинационное рассеяние света (КРС) на некогерентных двухмагнонных модах в антиферромагнетиках интенсивно изучалось с 1960-х годов как экспериментально, так и теоретически [12; 31; 32]. В результате правила отбора для комбинационного рассеяния на магнонных парах были успешно описаны из симметрии рамановского тензора. Более того, это позволило понять нетривиальную форму спектра спонтанного комбинационного рассеяния света [Рис. 1.2]. Установлено, что форма спектра определяется плотностью состояний магнонов (DOS) и, кроме того, магнон-магнонным рассеянием. В частности, хотя двухмагнонные моды из всей зоны Бриллюэна могут взаимодействовать со светом, в спектре рассеяния доминируют моды с частотами особенностей ван Хова, которые находятся вблизи краев зоны Бриллюэна [31]. Несмотря на то, что спектр КРС не чувствителен напрямую к отдельным задействованным волновым векторам, правила отбора все же диктуют зависимости весовых коэффициентов от волнового вектора. Они подчеркивают вклад рассеяния пар магнонов из определенной области в зоне Бриллюэна.

Возбуждение двухмагнонных мод воздействием коротких лазерных импульсов можно описать как импульсное вынужденное комбинационное рассеяние (ИВКРС), которое, в принципе, определяется тем же взаимодействием света с веществом, что и КРС [34; 35]. Действительно, развитие технологий фемтосекундных лазеров привело к появлению экспериментальных работ, в которых удалось пронаблюдать ИВКРС как на одномагнонных модах [36], так и на двухмагнонных модах [37—40]. В работах [37; 38] была впервые показана

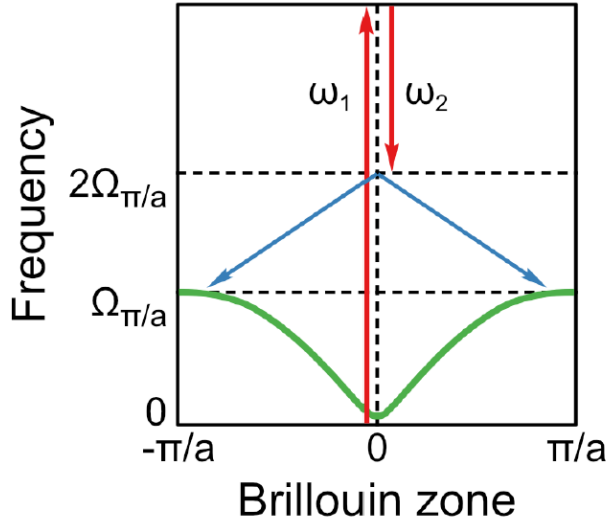


Рисунок 1.1 — Схематичное представление спонтанного комбинационного рассеяния света на двухмаглонной моде. Фотон с частотой ω_1 возбуждает пару магнов с противоположными волновыми векторами. Зеленым цветом изображена дисперсия магнов.

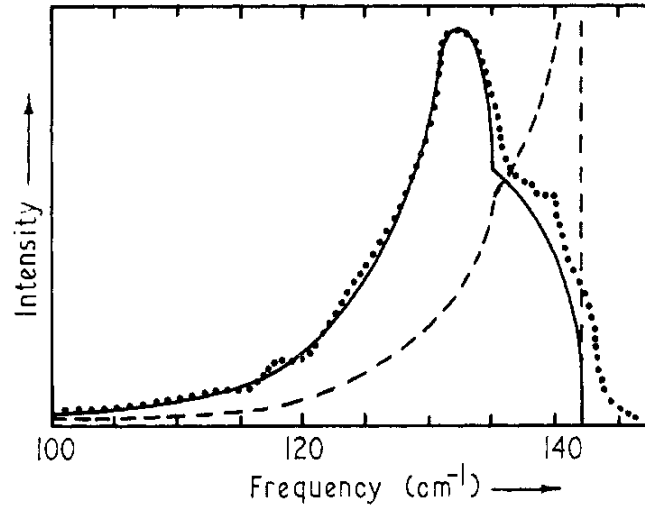


Рисунок 1.2 — Характерный спектр КРС на двухмаглонной моде в RbMnF_3 . Рисунок воспроизведен из статьи [33]. Сплошная и пунктирная линия соответствует рассчитанному спектру двухмаглонной моды с учетом и без учета магнон-магнонного рассеяния, соответственно. Точками изображены экспериментальные данные. Влияние DOS и магнон-магнонного рассеяния будут рассмотрены более подробно в Главе 4.

на возможность возбуждения и детектирования когерентных двухмаглонных мод лазерными импульсами в MnF_2 . Продемонстрированные результаты были объяснены так называемым квантовым сжатием магнов. В сжатом состоянии флуктуации намагниченности кристаллографической элементарной ячейки пе-

риодически изменяются во времени и становятся ниже уровня квантового шума в основном состоянии. Данная терминология берет свое начало в квантовой оптике, где обычно применяется для системы невзаимодействующих бозонов, что, потенциально, ограничивает применимость данного подхода для случая двухмагнонных мод с сильным магнон-магнонного рассеяния. В работах [39; 40] были представлены результаты по возбуждению двухмагнонной моды в кубических антиферромагнетиках KNiF_3 и K_2NiF_4 и предложен иной подход к описанию сверхбыстрой когерентной магнитной динамики. Было выдвинуто предположение, что возбуждение двухмагнонных мод приводит к осцилляции длины антиферромагнитного вектора, которое, в свою очередь, влияет на магнитооптические свойства кристалла. Однако данное предположение связывает характер двухмагнонной динамики с ориентацией антиферромагнитного вектора, что в частности, означает чувствительность к антиферромагнитным доменам и необходимость перевода кристалла в однодоменное состояние. При этом важно отметить, при лазерно-индуцированном управлении короткодействующими обменным взаимодействием, соответствующая спиновая динамика может не описываться в рамках моделей, рассматривающих квазиоднородную динамику параметров магнитного порядка. Как подчеркивалось в ряде теоретических исследований [18; 19; 21; 40–42], магнитная динамика на частоте двухмагнонных мод тесно связана с зависящими от времени корреляциями между спинами ближайших соседей. Следовательно, спиновые корреляции являются еще одним важным параметром, который подлежит анализу для всестороннего понимания спиновой динамики, вызванной лазерно-индуцированным возмущением обменного взаимодействия [21; 41; 43–45]. Действительно, знак и величина спин-спиновых корреляций, характеризующих то или иное магнитное состояние, однозначно связаны со знаком и силой обменного взаимодействия. Однако, поскольку спиновые корреляции сами по себе не являются магнитным параметром порядка, остается неясным, как такая динамика может проявляться в экспериментах по методу оптической накачки-зондирования, измеряющих, как правило, только макроскопические квазиоднородные параметры магнитной среды.

Далее будут рассмотрены существующие на данный момент теоретические подходы к описанию лазерно-индуцированной динамики. В разделе 1.1 рассматривается основное состояние антиферромагнетиков и представление двухмагнонной моды в рамках вторичного квантования. В разделе 1.2 показана

ны модель связывающая электродипольные переходы в материале с магнитной подсистемой, выраженной через спиновые корреляции. В разделе 1.3 рассматривается влияние спиновой динамики на оптические свойства материала. В разделе 1.4 описан процесс лазерно-индуцированного возмущения обменного взаимодействия, которое приводит к возбуждению магнитной динамики.

1.1 Основное состояние антиферромагнетиков и двухмагنونная мода

Несмотря на то, что ферро- и антиферромагнитное упорядочение определяются обменным взаимодействием и, зачастую, представимы в рамках модели Гейзенберга, отличия этих магнетиков заключается не только в знаке обменной константы. Одной из ключевых особенностей антиферромагнетиков является основное состояние, не описываемое классическим (неелевским) представлением противонаправленных спинов различных магнитных подрешеток. Действительно, если рассмотреть простейший случай двухподрешеточного антиферромагнетика, в котором все магнитные ионы находятся в эквивалентных узлах кристаллической решетки, то можно заметить, что в рамках классического представления у системы появляется вырождение основного состояния по перестановке магнитных подрешеток [46]. Рассматривая антиферромагнетики с помощью квантовой механики, можно обнаружить, что основное состояние нельзя выразить аналитически, а для определения энергии возбуждаемых спиновых волн требуется применение дополнительных приближений.

Далее в тексте для описания магнитной структуры магнетиков будет использоваться модель Гейзенберга, связывающая направления спинов в соседних узлах магнитной подрешетки константой обменного взаимодействия невозмущенной системы $J > 0$

$$\hat{H} = J \sum_{i\delta} \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta}, \quad (1.1)$$

где $\hat{\mathbf{S}}_i = \hat{\mathbf{S}}(\mathbf{R}_i)$ - оператор спина в позиции $\mathbf{R}_i$ в решетке, а индекс δ обозначает вектор $\boldsymbol{\delta} = (\delta_x, \delta_y, \delta_z)^T$ до ближайшего соседа.

1.1.1 Теория спиновых волн в антиферромагнетиках. Приближение Гольштейна-Примакова

В случае малых амплитуд спиновые волны в ферромагнетиках могут быть представлены как невзаимодействующие бозоны. Для проецирования спинового подпространства на бозонное, в случае трехмерного кристалла, часто используют приближение Гольштейна-Примакова [8], описывающее связь операторов спина и бозоновских операторов рождения и уничтожения

$$\begin{aligned} S_i^+ &= \left(\sqrt{2S - \hat{n}_i} \right) \hat{a}_i \\ S_i^- &= \hat{a}_i^\dagger \left(\sqrt{2S - \hat{n}_i} \right) \\ S_i^z &= S - \hat{n}_i, \end{aligned} \quad (1.2)$$

где n_i – оператор количества магнонов в i узле решетки. Здесь ось z выбрана в качестве оси квантования, что подразумевает равновесную ориентацию спинов магнитной подрешетки вдоль этого направления. Квадратный корень, появившийся в выражениях для лестничных операторов спина, раскладывается по степеням $1/2S$ при условии малых отклонений системы от равновесия $\langle n \rangle \ll 2S$

В случае антиферромагнетиков удобно ввести еще один набор бозонных операторов, соответствующий второй магнитной подрешетке

$$\begin{aligned} S_j^- &= \left(\sqrt{2S - \hat{n}_j} \right) \hat{b}_j \\ S_j^+ &= \hat{b}_j^\dagger \left(\sqrt{2S - \hat{n}_j} \right) \\ S_j^z &= -S + \hat{n}_j. \end{aligned} \quad (1.3)$$

Таким образом, при малых амплитудах спиновых волн, модель Гейзенберга для антиферромагнетиков оказывается представима в операторах магнонов Гольштейна-Примакова. Важно отметить, что квадратичные по числу частиц компоненты отвечают за магнон-магнонное рассеяние, которое опускается из рассмотрения в линейной теории. При переходе в обратное пространство появляется первое принципиальное отличие антиферромагнетиков от ферромагнетиков – наличие "аномального" вклада в энергию, связывающего магнонные операторы из различных решеток

$$\hat{H}_0 = JSn_a \sum_{\mathbf{k}} \left[(\hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + \hat{b}_{-\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{-\mathbf{k}}) + \gamma_{\mathbf{k}} (\hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{-\mathbf{k}}^\dagger + \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{-\mathbf{k}}) \right], \quad (1.4)$$

где n_a - число ближайших магнитных соседей, $\gamma_{\mathbf{k}} = \frac{1}{n_a} \sum_{\boldsymbol{\delta}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta})$. Слагаемые с множителем $\gamma_{\mathbf{k}}$, так называемые "аномальные" слагаемые, описывают связь между двумя магнитными подрешетками. Таким образом, гамильтониан антиферромагнетика, записанный через бозоны Гольштейна-Примакова, оказывается не диагональным. Это означает, что даже в пределе нулевой температуры, в антиферромагнетиках присутствуют магноны, а основное состояние не соответствует классическому. Чтобы диагонализировать гамильтониан нужно применить преобразование Боголюбова [47], которое вводит новые пары бозонных операторов. После данного преобразования гамильтониан принимает форму, соответствующую обычному гармоническому осциллятору

$$\hat{H}_0 = \sum_{\mathbf{k}} \hbar \Omega_{\mathbf{k}} (\hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} + \hat{\beta}_{-\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{\beta}_{-\mathbf{k}} + 1), \quad (1.5)$$

$$\hbar \Omega_{\mathbf{k}} = JSn_a \sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}. \quad (1.6)$$

Несмотря на то, что в линейной теории отсутствует магнон-магнонное взаимодействие и, как следствие, формально отсутствует энергия связи между магнонами, оптическое возбуждение и детектирование данных магнонов происходит в паре, так как рассматривается антиферромагнетик без анизотропии, что означает нулевую энергию магнонов в центре зоны Бриллюэна. По этой причине данную магнонную пару принято называть двухмагнонной модой. В действительности учет следующего порядка разложения дает собственную энергию, которая вносит поправку в спектр оптически возбуждаемой двухмагнонной моды и убывает с увеличением эффективной величины спина магнитного иона [33].

1.2 Электродипольные переходы и спиновые корреляции

Как было указано в разделе 1.1, в случае двухмагнонных мод, оптическое возбуждение и детектирование магнонов происходит попарно. Однако в оптическом диапазоне свет возбуждает электродипольные переходы и, следовательно, не взаимодействует со спиновой подсистемой напрямую, если не учитывается спин-орбитальное взаимодействие. Тем не менее влияние электрического поля

лазерного импульса на электронную подсистему может приводить к возникновению спиновой динамики даже в отсутствие спин-орбитального взаимодействия. Минимальной моделью, описывающей это, является модель Хаббарда. Далее проиллюстрирована связь между электродипольными переходами и спиновыми корреляциями, с использованием преобразование Шриффера-Вольфа [48].

Не зависящая от времени полузаполненная модель Хаббарда выражается в виде

$$\hat{H}_U = - \sum_{ij\sigma} \tau_{ij} \hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{j\sigma} + \frac{1}{2} U \sum_i \hat{n}_i (\hat{n}_i - 1), \quad (1.7)$$

где τ_{ij} — амплитуда перескока между двумя узлами i и j , $\hat{c}_{i\sigma}$ ($\hat{c}_{i\sigma}^\dagger$) оператор уничтожения (рождения) электрона в узле i с проекцией спина $\sigma = \uparrow, \downarrow$. U — параметр локального отталкивания, в данном выражении $\hat{n}_i = \sum_\sigma \hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{i\sigma}$ — оператор числа электронов в узле i . Это уравнение раскладывается в

$$\hat{H}_U = -\lambda \hat{T} + U \hat{D}, \quad (1.8)$$

где $\hat{T}$ — оператор кинетической энергии, $\hat{D}$ — оператор двойного заполнения. λ обозначает порядок скачка, который численно равен 1, но позволяет отслеживать порядок разложения по скачкам [49]. Оператор $\hat{T}$ определяет перескок между узлами решетки и может быть разбит на четыре компонента, схематически показанные на Рис. 1.3(а). Недиagonalные операторы перескока $\hat{T}_+$ и $\hat{T}_-$ изменяют число дважды занятых узлов и, следовательно, кулоновскую энергию, а диагональные операторы $\hat{T}_2$ и $\hat{T}_0$ этого не делают.

Поскольку в данной работе рассматривается диэлектрики с шириной запрещенной зоны гораздо большей, чем энергии фотонов в лазерных импульсах, взаимодействие света с веществом будет происходить в бездиссипативном режиме, а значит возмущение системы слабое и не меняет кулоновскую энергию U . Поэтому в дальнейшем анализе будут отделены эффекты перестановок электронов между узлами решетки от изменений заполненности узлов. По этой причине вводится каноническое преобразование

$$\hat{H}_{\text{eff}} + U \hat{D} = e^{i\hat{\mathcal{S}}} \hat{H}_U e^{-i\hat{\mathcal{S}}}, \quad (1.9)$$

где $\hat{\mathcal{S}}$ разлагается по порядкам перескока $\hat{\mathcal{S}} = \sum_{i=1}^{\infty} \lambda^i \hat{\mathcal{S}}^{(i)}$. После замены и разложения по теории возмущений становится возможно ввести эффективный гамильтониан для малых по энергии уровней. Определив $\hat{\mathcal{S}}^{(1)}$ таким образом,

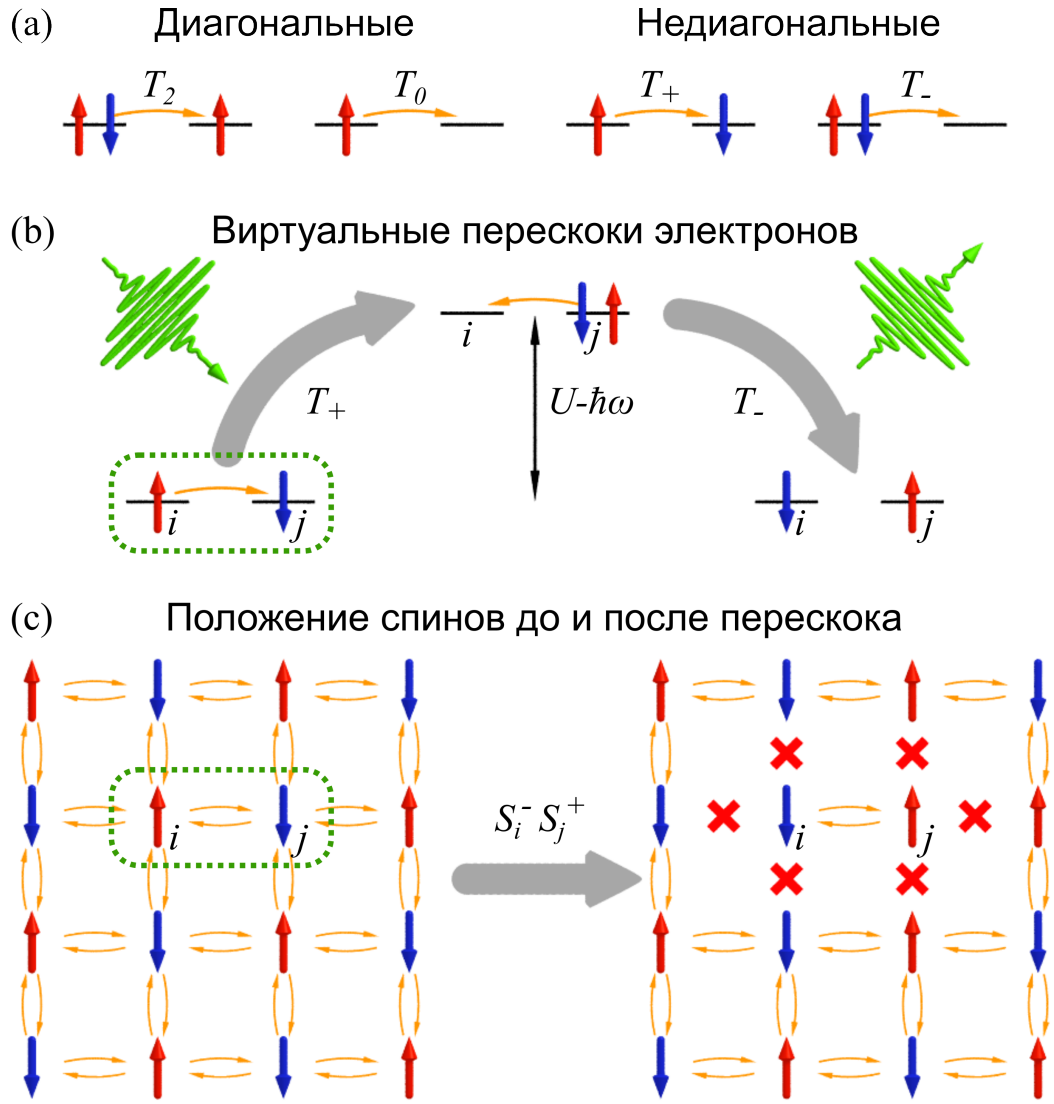


Рисунок 1.3 — (a) Иллюстрация диагональных и недиагональных перескоков электронов в модели Хаббарда, соответствующих $\hat{T}_2, \hat{T}_0$ и $\hat{T}_+, \hat{T}_-$, соответственно. (b) Взаимный перескок электронов между двумя узлами, возбуждаемый фотоном с энергией $\hbar\omega$. (c) Схематическая иллюстрация 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.

чтобы удовлетворить уравнению $\hat{T}_- + \hat{T}_+ = i[\hat{\mathcal{S}}^{(1)}, U\hat{D}]$, получаем, что все компоненты, меняющие число электронов на узел, исчезают. Тогда $\hat{\mathcal{S}}^{(1)}$ мож-

но найти как линейную комбинацию операторов недиагонального перескока. При сохранении только второго порядка в разложении по числу перескоков эффективный гамильтониан (1.9) может быть переписан как комбинация двух операторов перескока, которая действует как оператор перестановки, как показано на Рис. 1.3(б):

$$\hat{H}_{\text{eff}}^{(2)} = -\frac{\lambda^2}{U} \hat{T}_- \hat{T}_+, \quad (1.10)$$

где вклад от $\hat{T}_+ \hat{T}_-$ пренебрегается ввиду отсутствия дважды заполненных узлов в основном состоянии. Операторы спина можно выразить через операторы рождения и уничтожения и матрицы Паули $2\hat{\mathbf{S}}_i = \sum_{\sigma_1 \sigma_2} \hat{c}_{i\sigma_1}^\dagger \boldsymbol{\sigma}_{\sigma_1 \sigma_2} \hat{c}_{i\sigma_2}$. Тогда эффективный гамильтониан (1.10) приобретает вид

$$\hat{H}_{\text{eff}}^{(2)} = \frac{2\lambda^2}{U} \sum_{ij} |\tau_{ij}|^2 \left(\hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_j - \frac{n_i n_j}{4} \right). \quad (1.11)$$

Таким образом, можно представить известное преобразование, связывающее динамику электронов со спиновой динамикой. В частности, сравнивая уравнения (1.1) и уравнения (1.11), можно получить известное выражение $J = 2|\tau_{ij}|^2/U$ для обменного взаимодействия [43]. Следовательно, за обменное взаимодействие в основном состоянии ответственны виртуальные перескоки электронов. При лазерном возбуждении вероятность таких виртуальных прыжковых процессов может меняться, что приводит к возмущениям обменных взаимодействий.

1.3 Влияние динамики спиновых корреляций на оптические параметры

Связь электродипольных переходов, описываемых в модели Хаббарда, и спиновых корреляций, представленных в модели Гейзенберга, может быть использована для описания взаимодействия света с магнитной подсистемой, и, как следствие, лазерно-индуцированной спиновой динамики. Для этого необходимо рассмотреть стандартное выражение электродипольного взаимодействия, которое для модели Хаббарда можно записать как

$$\hat{H}^1(t) = \frac{a^3}{2} \hat{\mathbf{P}}(t) \cdot \mathbf{E}(t), \quad (1.12)$$

где $\hat{\mathbf{P}} = Qa^{-3} \sum_i \hat{n}_i \mathbf{R}_i$ — оператор поляризации, Q — электрический заряд, а $\mathbf{E}(t)$ — электрическое поле импульса, a — параметр решетки.

Далее, чтобы переписать (1.12) в выражение, содержащее в явном виде спиновые корреляции, нужно произвести оценку диэлектрической восприимчивости. Согласно формуле Кубо [50] диэлектрическая восприимчивость и диэлектрическая проницаемость на частоте ω находятся как

$$\chi^{\mu\nu}(t) = -\frac{ia^3}{2\hbar\epsilon_0} \left\langle \left[\hat{P}^\mu(t); \hat{P}^\nu(0) \right] \right\rangle \theta(t); \quad (1.13)$$

$$\epsilon^{\mu\nu}(\omega) = \epsilon^0 I^{\mu\nu} - i \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{\mu\nu}(t) e^{-i\omega t} dt, \quad (1.14)$$

где усреднение ведется по электронной подсистеме, $\hat{P}^\mu$ — μ -я компонента $\hat{\mathbf{P}}$, $\epsilon^0 I^{\mu\nu}$ учитывает все вклады в диэлектрическую проницаемость, вносимые оптическими переходами высоких энергий, фононами и т. д., а $I^{\mu\nu}$ обозначает единичную матрицу, $\mu, \nu = \{x, y, z\}$.

Чтобы ввести спиновые корреляции в выражение для диэлектрической проницаемости [Ур. (1.14)], удобно дважды произвести интегрирование по частотам:

$$\begin{aligned} \epsilon^{\mu\nu}(\omega) = \epsilon^0 I^{\mu\nu} - \sum_n \frac{a^3}{Z \hbar^2 \omega^2 \epsilon_0} \langle \psi_n | \left[\hat{P}^\mu, [\hat{P}^\nu, \hat{H}_U] \right] | \psi_n \rangle \\ - \sum_{nm} a^3 \frac{e^{-\epsilon_n/k_B T} - e^{-\epsilon_m/k_B T}}{Z \hbar^3 \omega^2 \epsilon_0} \frac{\langle \psi_n | [\hat{P}^\mu, \hat{H}_U] | \psi_m \rangle \langle \psi_m | [\hat{P}^\nu, \hat{H}_U] | \psi_n \rangle}{\omega_{nm} + \omega - i0^+}, \end{aligned} \quad (1.15)$$

где $\{|\psi_n\rangle\}$ — собственные состояния электронов с уровнями энергии $\{\epsilon_n\}$. $Z = \sum_n \exp[-\epsilon_n/k_B T]$ — каноническая статистическая сумма с постоянной Больцмана k_B и температурой T [18]. Как уже было показано в разделе 1.2, взаимодействие ближайших соседей, коммутаторы с гамильтонианом Хаббарда [Ур. (1.7)] и оператор поляризации можно записать в форме, напоминающей

оператор перескока

$$\begin{aligned}
[\hat{P}^\mu, \hat{H}_U] &= \frac{Q}{a^3} \left[\sum_i \hat{n}_i R_i^\mu, -\lambda \hat{T} \right] \\
&= -\frac{\lambda Q}{a^3} \sum_{i,j} (R_i^\mu - R_j^\mu) \tau_{i,j} \hat{c}_i^\dagger \hat{c}_j \\
&= -\frac{\lambda Q}{a^3} \sum_{i,\delta} \delta^\mu \tau_{i,i+\delta} \hat{c}_i^\dagger \hat{c}_{i+\delta}.
\end{aligned} \tag{1.16}$$

Следовательно, коммутаторы дают только кинетические члены, и, как уже было показано в предыдущем разделе [Ур. (1.11)], их можно переписать непосредственно в терминах спиновых корреляций. Это дает основное выражение, описывающее вклад спиновых корреляций в диэлектрическую восприимчивость [18]

$$\varepsilon^{\mu\nu}(\omega) = \varepsilon^0 I^{\mu\nu} + \sum_{\delta} \frac{2J \left(\langle \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta} \rangle - \frac{1}{4} \right)}{U^2 - \hbar^2 \omega^2} \frac{Q^2 \delta^\mu \delta^\nu}{\varepsilon_0 a^3}, \tag{1.17}$$

где $\langle \hat{A} \rangle = \sum_n Z^{-1} \exp(-\varepsilon_n/k_B T) \langle \varphi_n | \hat{A} | \varphi_n \rangle$ и новые волновые функции $|\varphi_m\rangle = \exp(i\lambda \hat{S}^{(1)}) |\psi_m\rangle$. Полученное выражение, связывает спиновые корреляции между различными соседями с диэлектрической проницаемостью. Важно подчеркнуть, что в рассматриваемых далее кубических кристаллах в основном состоянии $\langle \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta} \rangle$ одинаково для всех связей δ , следовательно, система оптически изотропна в основном состоянии. Таким образом, спиновые корреляции дают вклад в оптические свойства кристалла, то есть возникает магнитная рефракция – изменение показателя преломления среды при переходе в антиферромагнитное состояние [51].

1.4 Лазерно-индуцированное возмущение обменного взаимодействия

Уравнение (1.17) описывает зависимость диэлектрической проницаемости от спиновых корреляций. Этого уже достаточно для описания модуляции оптического импульса за счет спиновых корреляций. Это же выражения можно использовать и для описания лазерно-индуцированного возмущения обменного взаимодействия в антиферромагнетиках. Для этого удобно записать

взаимодействие света с материей по-другому. В частности, для относительно небольших возмущений (в терминах электрического поля $\mathbf{E}$ по сравнению с полями, вызывающими пробой диэлектрика) можно рассматривать электрическую поляризацию $\mathbf{P}$ как линейную функцию от электрического поля $\mathbf{E}$. Это позволяет использовать макроскопическое приближение линейной диэлектрической восприимчивости и определить поляризацию как $\mathbf{P}(\omega) = \chi(\omega)\mathbf{E}(\omega)$. При рассмотрении кубических кристаллов это означает, что взаимодействие света с веществом $\hat{H}^1$ можно переписать в виде

$$\hat{H}^1 = \frac{a^3 \varepsilon_0}{2} \sum_{\mu\nu} \int_{-\infty}^{\infty} \hat{\chi}^{\mu\nu}(t - \tau) E^\mu(t) E^\nu(\tau) d\tau, \quad (1.18)$$

где используется оператор восприимчивости $\hat{\chi}$ вместо его математического ожидания. Такое изменение допускается при работе в представлении Гейзенберга, где усреднение проводится по начальному равновесному состоянию.

В случае монохроматических волн $E^\mu(t) = \frac{1}{2}(E_0^\mu e^{i\omega_p t} + E_0^{\mu*} e^{-i\omega_p t})$, где ω_p – частота возбуждающей волны, результирующий интеграл содержит статическую и осциллирующую компоненту. Так как магнитная динамика имеет гораздо более низкие частоты по сравнению с оптическими ($\Omega_k \ll \omega$), осциллирующие компоненты возмущения можно усреднить

$$\hat{H}^1 = \frac{a^3 \varepsilon_0}{2} \sum_{\mu} \frac{1}{2} \hat{\chi}^{\mu\nu}(\omega_p) E_0^\mu E_0^\nu. \quad (1.19)$$

В соответствии с уравнением (1.17), оператор диэлектрической проницаемости представим через спинные операторы, что позволяет ввести рассматривать возмущение в рамках модели Гейзенберга [21; 27; 40]

$$\Delta \hat{H}_0 = \Delta J \sum_{i,\delta} (\mathbf{e} \cdot \boldsymbol{\delta}/a)^2 \left(\hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta} - \frac{1}{4} \right), \quad (1.20)$$

где $\mathbf{e} = \mathbf{E}_0/|\mathbf{E}_0|$ – вектор поляризации электрического поля, и

$$\Delta J = \frac{J E_0^2 Q^2 a^2}{2 (U^2 - \hbar^2 \omega_p^2)}. \quad (1.21)$$

Уравнение (1.21) описывает реакцию системы на монохроматическое лазерное возбуждение. Чтобы распространить этот результат на гауссовоподобные импульсы $E(t) = E_0 \exp(-t^2/2\tau_p^2) \cos(\omega_p t)$, где τ_p – длительность импульса и ω_p – центральная частота импульса накачки, необходимо обратить внимание

на то, что рассматриваемые частоты накачки далеки от оптических переходов, и спектральной дисперсией диэлектрической восприимчивости можно пренебречь, поэтому $\hat{\chi}(\omega)$ можно заменить постоянной величиной $\hat{\chi}(\omega_p)$. Тогда возмущение приобретает временную зависимость, определяемую временным профилем импульса накачки:

$$\Delta \hat{H}_0 = f(t) \Delta J \sum_{i,\delta} (\mathbf{e} \cdot \boldsymbol{\delta}/a)^2 \left(\hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta} - \frac{1}{4} \right), \quad (1.22)$$

где $f(t) = \exp(-t^2/\tau_p^2)$. Стоит отметить, что $f(t)$ не ограничивается гауссовой формой импульса, а может описывать произвольную форму импульса, ширина спектра которого недостаточно велика, чтобы возникла необходимость учета дисперсии диэлектрической восприимчивости внутри спектра импульса.

Таким образом, в данной главе был введен базовый формализм, необходимый для описания динамики спиновых корреляций на частотах двухмагнетонных мод и взаимодействия света с магнитной подсистемой диэлектрических антиферромагнетиков.

Глава 2. Правила отбора для сверхбыстрого оптического возбуждения и детектирования терагерцевой динамики спиновых корреляций в кубических антиферромагнетиках

Экспериментальные работы по возбуждению двухмагнонной динамики фемтосекундными лазерными импульсами показывают, что поляризационные зависимости данной динамики связаны в первую очередь с симметрией кристалла, а не ориентацией макроскопических параметров магнитного порядка [37; 40]. В данной главе представлено теоретическое описание лазерно-индуцированного возмущения обменного взаимодействия в антиферромагнитных диэлектриках, возбуждаемой спиновой динамикой и 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 двухмагнонных мод линейно поляризованными фс лазерными импульсами. Проанализированы эффекты от возникающей динамики спиновых корреляций на макроскопические характеристики системы, такие как диэлектрическая проницаемость и антиферромагнитный вектор. Показано, что лазерно-индуцированная динамика спиновых корреляций для ближайших соседей проявляется на макромасштабе в виде индуцированной оптической анизотропии. Получены поляризационные зависимости для модуляции зондирующего импульса на частоте двухмагнонной моды.

В разделе 2.1 представлена схема рассматриваемых экспериментов по ИВКРС на двухмагнонной моде, а также теоретический базис для описания основного состояния и динамики спиновых корреляций. В разделе 2.2 показаны результаты расчетов осцилляций спиновых корреляций и соответствующей динамики диэлектрической проницаемости. Показано влияние магнитной анизотропии на динамику антиферромагнитного вектора. В разделе 2.3 проведено сравнение полученных результатов с экспериментальными данными, представленными в литературе.

Результаты данной главы вошли в статью *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.

2.1 Модель для описания динамики спиновых корреляций в антиферромагнетиках

2.1.1 Схема моделируемого эксперимента

В качестве модельной установки выбрана схема, соответствующая стандартному эксперименту по методике накачка-зондирование, предназначенному для оптического детектирования с временным разрешением лазерно-индуцированной спиновой динамики [Рис. 2.1(а)]. Данная схема будет рассматриваться во всех последующих главах. Импульс оптической накачки длительностью $2\tau_p$ и углом поляризации θ падает вдоль одной из осей кристалла кубического антиферромагнетика. Спиновая динамика, возбуждаемая импульсом накачки, исследуется путем измерения изменения поляризации $\Delta\varphi(t)$ более слабого зондирующего импульса, задержанного на время t относительно импульса накачки и первоначально поляризованного под углом φ . В нашем рассмотрении, импульс накачки имеет временной профиль интенсивности, соответствующий функции Гаусса, а длительность $2\tau_p$ определена на уровне e^{-1} пиковой интенсивности.

В качестве материала рассмотрена примитивная кубическая кристаллическая структура с параметром решетки a . Магнитные ионы занимают каждый угол куба. Материал обладает антиферромагнитным упорядочением G-типа, когда каждый магнитный ион окружен ионами с противоположным магнитным моментом. Таким образом, магнитная система описывается двумя магнитными подрешетками с противоположными ориентациями спинов. Ось z выбрана осью квантования спинов (т. е. равновесным направлением антиферромагнитного вектора $\mathbf{L}$) и совпадает с направлением распространения импульсов накачки и зондирования. В дальнейшем, полученные результаты будут обобщены и на другие ориентации антиферромагнитного вектора.

Диэлектрические свойства рассматриваемого материала описаны сильным электрон-электронным взаимодействием, то есть могут быть представлены как однозонный моттовский диэлектрик. Рассматриваемый антиферромагнетик является прозрачным как для импульса накачки, так и для зондирующего импульса. Таким образом, взаимодействие рассматривается в электродипольном

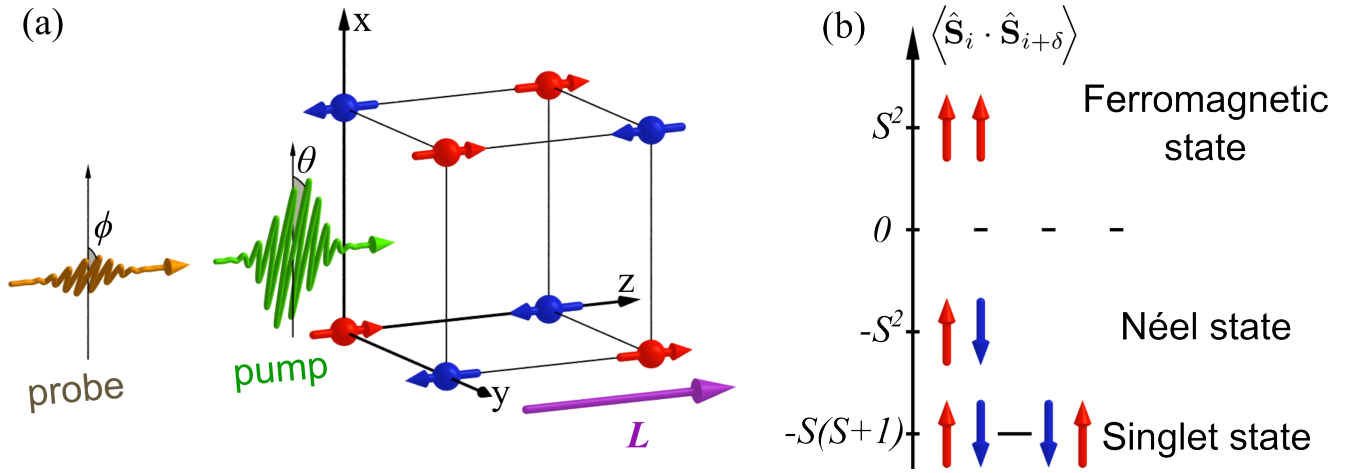


Рисунок 2.1 — (a) Иллюстрация модельной установки. Магнитные ионы формируют (красные и синие) антиферромагнитно связанные подрешетки. $\mathbf{L}$ - классический антиферромагнитный вектор. Электрические поля падающих импульсов накачки и зондирования составляют углы θ и ϕ относительно оси x , соответственно. 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.

приближении, описанному в главе 1.2, что оправдано в видимой и ближней инфракрасной области спектра для большого числа антиферромагнетиков. Также в анализ взаимодействия со светом не были включены эффекты спин-орбитального взаимодействия.

2.1.2 Основное состояние и равновесные спиновые корреляции

В соответствии с подходом, предложенным в [40], магнонные операторы $\alpha_{\mathbf{k}}$ и $\beta_{-\mathbf{k}}$ в двухмагнонном гамильтониане (1.5) заменим на следующие операторы:

$$\begin{aligned}\hat{K}_{\mathbf{k}}^Z &= (\hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} + \hat{\beta}_{-\mathbf{k}}^\dagger \hat{\beta}_{-\mathbf{k}} + 1)/2; \\ \hat{K}_{\mathbf{k}}^+ &= \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\beta}_{-\mathbf{k}}^\dagger; \hat{K}_{\mathbf{k}}^- = \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \hat{\beta}_{-\mathbf{k}},\end{aligned}\tag{2.1}$$

которые действуют напрямую на магнонную пару и определяют число двухмагнонных пар, так же как и операторы рождения и уничтожения, соответственно. Коммутационные соотношения для $\hat{K}$ можно получить из коммутационных соотношений бозонов для магнонных операторов $[\hat{K}_{\mathbf{k}}^Z, \hat{K}_{\mathbf{k}}^{\pm}] = \pm \hat{K}_{\mathbf{k}}^{\pm}$, $[\hat{K}_{\mathbf{k}}^-, \hat{K}_{\mathbf{k}}^+] = 2\hat{K}_{\mathbf{k}}^Z$.

В терминах двухмагнонных операторов $\hat{K}$ гамильтониан изотропной системы имеет вид:

$$\hat{H}_{2M} = \sum_{\mathbf{k}} 2\hbar\Omega_{\mathbf{k}}\hat{K}_{\mathbf{k}}^Z. \quad (2.2)$$

Спиновые корреляции связаны с операторами $\hat{K}$ следующим образом:

$$\langle \hat{S}_i^z \hat{S}_{i+\delta}^z \rangle = -S(S+1) + \frac{4S}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^Z(t) \rangle - \gamma_{\mathbf{k}} \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^X(t) \rangle}{\sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}}; \quad (2.3)$$

$$\langle \hat{S}_i^x \hat{S}_{i+\delta}^x + \hat{S}_i^y \hat{S}_{i+\delta}^y \rangle = \frac{4S}{N} \sum_{\mathbf{k}} \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}) \frac{\langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^X(t) \rangle - \gamma_{\mathbf{k}} \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^Z(t) \rangle}{\sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}}, \quad (2.4)$$

где N – число узлов решетки, $\hat{K}_{\mathbf{k}}^X = \frac{1}{2}(\hat{K}_{\mathbf{k}}^+ + \hat{K}_{\mathbf{k}}^-)$. Усреднение производится по невозмущенному начальному состоянию, поэтому всюду используется представление Гейзенберга. Антиферромагнитный вектор также напрямую связан со спиновыми корреляциями и определяется соотношением

$$\langle \hat{L}^z \rangle = \frac{NS}{2} - \frac{1}{n_a S} \sum_{i,\delta} \langle \hat{S}_i^z \hat{S}_{i+\delta}^z \rangle. \quad (2.5)$$

С точки зрения классической физики спиновые корреляции показывают взаимную ориентацию спинов ближайших соседей и тип упорядочения и принимают значения S^2 для простого ферромагнетика и $-S^2$ для неелевского состояния. Однако, с точки зрения квантовой механики, классическое неелевское состояние в антиферромагнетиках не является основным, как обсуждалось в Главе 1. Несмотря на то, что в трехмерной модели Гейзенберга дальний порядок соответствует неелевскому состоянию, квантовые флуктуации уменьшают локальные спиновые корреляции ниже классического предела $-S^2$ с нижним пределом $-S(S+1)$, соответствующему локальному синглетному состоянию для двух спинов. Следовательно, даже несмотря на то, что основное состояние будет

близко к классическому состоянию, численное значение спиновых корреляций ниже того, которое доступно в классическом приближении. Спиновые корреляции в значительной степени определяются симметрией магнитной решетки, что, в кубическом кристалле, приводит к их равенству в основном состоянии для разных связей $\langle \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta^x} \rangle = \langle \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta^y} \rangle = \langle \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta^z} \rangle$.

2.1.3 Динамика спиновых корреляций

В разделе 1.4 взаимодействие света с веществом описано в терминах возмущения обменного взаимодействия, что приводит к возникновению анизотропии свойств системы, поскольку связи вдоль разных осей кристалла возмущаются по-разному в зависимости от поляризации $\mathbf{e}$ электрического поля. Далее приведена оценка спиновой динамики, вызванной таким возмущением. Поскольку уравнение (1.22) аналогично невозмущенному гамильтониану [Ур. (1.1)] определяется в терминах обменных членов, мы можем выразить его через двухмагнонные операторы. Используя преобразование из раздела 1.1.1, для $\Delta \hat{H}_0$ можно получить следующее двухмагнонное описание:

$$\Delta \hat{H}_{2M} = f(t) \sum_{\mathbf{k}} \left[\hbar \Delta \Omega_{\mathbf{k}} \hat{K}_{\mathbf{k}}^Z + 2\hbar V_{\mathbf{k}} \hat{K}_{\mathbf{k}}^X \right], \quad (2.6)$$

в котором

$$\Delta \Omega_{\mathbf{k}} = \zeta \Delta JS / \hbar \frac{1 - \xi_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}}}{\sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}}; \quad (2.7)$$

$$V_{\mathbf{k}} = \zeta \Delta JS / \hbar \frac{\xi_{\mathbf{k}} - \gamma_{\mathbf{k}}}{\sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}}; \quad (2.8)$$

$$\xi_{\mathbf{k}} = 1/\zeta \sum_{\delta} (\mathbf{e} \cdot \boldsymbol{\delta}/a)^2 \exp(i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}), \quad (2.9)$$

где $\zeta = \sum_{\delta} (\mathbf{e} \cdot \boldsymbol{\delta}/a)^2$. Далее будут рассматриваться сверхкороткие импульсы, для которых $\tau_{\mathbf{k}} \Omega_{\mathbf{k}} \ll 1$. Кроме того, так как обычно $\Delta J \ll J$ (оценка будет представлена далее в тексте) относительное изменение частоты оказывается малым $\Delta \Omega_{\mathbf{k}} \ll \Omega_{\mathbf{k}}$. Изменение частоты магнонов представляет собой слабое возмущение, которое присутствует только во время импульса и приводит к фазовому сдвигу следующего порядка малости: $\tau_p \Delta \Omega_{\mathbf{k}} \ll \tau_p \Omega_{\mathbf{k}} \ll 1$, котором мы пренебрегаем в дальнейших обсуждениях.

Для оценки спиновой динамики, вызванной оптическим возмущением обменного взаимодействия, был сохранен только главный порядок двухмагнетонных операторов и опущена динамика для времен $t < \tau_p$, то есть во время импульса. Используя указанные выше приближения, можно сформулировать задачу о динамике двухмагнетонных операторов в рамках теории возмущений, где лазерно-индуцированное возмущение имеет вид

$$\Delta \hat{H}_{2M} = 2f(t) \sum_{\mathbf{k}} \hbar V_{\mathbf{k}} \hat{K}_{\mathbf{k}}^X. \quad (2.10)$$

При этом

$$\begin{aligned} [\hat{K}_{\mathbf{k}}^X, \hat{K}_{\mathbf{k}}^Y] &= -i\hat{K}_{\mathbf{k}}^Z; \\ [\hat{K}_{\mathbf{k}}^Y, \hat{K}_{\mathbf{k}}^Z] &= i\hat{K}_{\mathbf{k}}^X; \\ [\hat{K}_{\mathbf{k}}^Z, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X] &= i\hat{K}_{\mathbf{k}}^Y. \end{aligned} \quad (2.11)$$

Для оператора $\hat{A}_{\mathbf{k}}$, являющегося одним из операторов $\hat{K}_{\mathbf{k}}$, записывается формула Кубо, связывающая динамику данного оператора с функцией Грина

$$\begin{aligned} \langle \hat{A}_{\mathbf{k}}(t) \rangle &= \langle \hat{A}_{q,0} \rangle - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t \langle [\hat{A}_{\mathbf{k}}(t), \Delta \hat{H}_{2M}(\tau)] \rangle d\tau \\ &= \langle \hat{A}_{q,0} \rangle + 2V_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} f(\tau) G(\hat{A}_{\mathbf{k}}, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X | t - \tau) d\tau \\ &= \langle \hat{A}_{q,0} \rangle + 2V_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} f(\omega) G(\hat{A}_{\mathbf{k}}, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X | \omega) e^{i\omega t} d\omega. \end{aligned} \quad (2.12)$$

Функция Грина в данном случае была получена из гамильтониана двухмагнетонной моды

$$\begin{cases} \omega G(\hat{A}_{\mathbf{k}}, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X | \omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \langle [\hat{A}_{\mathbf{k}}, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X] \rangle - 2i\Omega_{\mathbf{k}} G(\hat{A}_{\mathbf{k}}, \hat{K}_{\mathbf{k}}^Y | \omega) \\ \omega G(\hat{A}_{\mathbf{k}}, \hat{K}_{\mathbf{k}}^Y | \omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \langle [\hat{A}_{\mathbf{k}}, \hat{K}_{\mathbf{k}}^Y] \rangle + 2i\Omega_{\mathbf{k}} G(\hat{A}_{\mathbf{k}}, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X | \omega), \end{cases} \quad (2.13)$$

которая в случае $\hat{A}_{\mathbf{k}} = \hat{K}_{\mathbf{k}}^X$ принимает вид

$$G(K_{\mathbf{k}}^X, K_{\mathbf{k}}^X | \omega) = -\frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{2\Omega_{\mathbf{k}} \langle K_{\mathbf{k}}^Z \rangle}{\omega^2 - (2\Omega_{\mathbf{k}})^2}, \quad (2.14)$$

где $\langle K_{\mathbf{k}}^Z \rangle$ в первом приближении является константой, так как оно определяет энергию системы.

В случае гауссового профиля импульса накачки $f(t) = e^{-t^2/\tau_p^2}$, динамика $\hat{K}_k^X(t)$ записывается через произведение синуса на функцию ошибок. Однако, так как основной интерес представляет динамика после прохождения импульса накачки $t > \tau_p$, то в выражении для $\hat{K}_k^X(t)$ функцию ошибок можно заменить на функцию Хевисайда, которая далее в тексте будет опущена, так как $t > \tau_p$.

$$\langle \hat{K}_k^X(t) \rangle = -4V_k \sqrt{\pi} \tau_p e^{-\Omega_k^2 \tau_p^2} \langle \hat{K}_k^Z \rangle \sin(2\Omega_k t) \theta(t). \quad (2.15)$$

Удобно ввести весовой коэффициент учитывающий длительность лазерного импульса, который для гауссового импульса накачки имеет вид

$$\sigma_k = \sqrt{\pi} \tau_p e^{-\Omega_k^2 \tau_p^2}. \quad (2.16)$$

Таким образом, поставляя полученную динамику двухмагнетонных операторов в уравнения (2.4,2.3), получаем аналитическое выражение для описания динамики спиновых корреляций при возбуждении системы сверхкоротким лазерным импульсом:

$$\langle \hat{S}_i^z(t) \hat{S}_{i+\delta}^z(t) \rangle = -S(S+1) + \frac{4S}{N} \sum_k \frac{\langle \hat{K}_k^z \rangle}{\sqrt{1-\gamma_k^2}} (1 + 2\gamma_k V_k \sigma_k \sin(2\Omega_k t)); \quad (2.17)$$

$$\langle \hat{S}_i^x(t) \hat{S}_{i+\delta}^x(t) + \hat{S}_i^y(t) \hat{S}_{i+\delta}^y(t) \rangle = \frac{4S}{N} \sum_k \frac{\langle \hat{K}_k^z \rangle \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta})}{\sqrt{1-\gamma_k^2}} (-\gamma_k - 2V_k \sigma_k \sin(2\Omega_k t)); \quad (2.18)$$

$$\Delta \langle \hat{\mathbf{S}}_i(t) \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta}(t) \rangle = \Delta J \frac{8S^2 \zeta}{N \hbar} \sum_k \frac{(\gamma_k - \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}))(\xi_k - \gamma_k)}{1 - \gamma_k^2} \langle \hat{K}_k^z \rangle \sigma_k \sin(2\Omega_k t). \quad (2.19)$$

Из уравнений (2.17,2.18) видно, что оптическое возбуждение системы приводит к тому, что спиновые корреляции начинают осциллировать с частотой $2\Omega_k$. Примечательно, что амплитуда этих колебаний определяется, в частности, параметром V_k [Ур. (2.8)], который зависит от ξ_k [Ур. (2.9)] и, следовательно, от угла поляризации импульса накачки θ .

Стоит отметить, что нестационарная часть спиновых корреляций зависит от σ_k [Ур. (2.16)], это означает, что с одной стороны, амплитуда динамики спиновых корреляций уменьшается при увеличении длительности импульсов

Таблица 1 — Материальные параметры KNiF_3 , используемые в расчетах

J мэВ	S	U эВ	a Å	ε^{xx}
8.8	1	6.2	4	2.14
[53]	[54]	[55]	[56]	[57]

накачки, а с другой стороны, наличие множителя τ_p показывает, что возбуждение динамики предельно короткими импульсами также не эффективно. Более подробно этот вопрос рассматривается в Главе 3. Данный результат согласуется с общеизвестной ролью длительности импульса накачки при импульсном возбуждении различных когерентных процессов [52]. Кроме того, динамика спиновой корреляции зависит от связей с ближайшими соседями, определяемыми δ . В частности, корреляции вдоль различных связей δ не являются независимыми, поскольку для динамики при $t > \tau_p$, $\sum_{\delta} \Delta \langle \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta} \rangle = 0$; полная энергия сохраняется после взаимодействия системы с импульсом накачки.

2.2 Лазерно-индуцированная спиновая динамика и динамика оптических параметров

В этом разделе показаны зависимости динамики (i) спиновых корреляций, (ii) антиферромагнитного вектора, (iii) модуляции зондирующего импульса от угла поляризации θ и рассмотрено (iv) влияния магнитной анизотропии на динамику антиферромагнитного вектора. Сначала будут представлены результаты для идеальной кубической решетки, которые в дальнейшем будут обобщены на анизотропный случай. Все результаты получены путём численного расчёта на основе уравнений (1.17, 2.19) с использованием параметров, взятых для модельного гейзенберговского антиферромагнетика KNiF_3 , приведенных в таблице 1.

2.2.1 Осцилляции спиновых корреляций

Чтобы проиллюстрировать зависимость лазерно-индуцированной динамики спиновых корреляций от времени t и поляризации накачки θ , на Рис. 2.2(a) построен график $\langle \hat{\mathbf{S}}_i(t) \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta_x}(t) \rangle$ для ближайших соседей по оси x . Длительность импульса накачки составляла $2\tau_p = 10$ фс, что соответствует использованной в экспериментах по лазерно-индуцированному возбуждению двухмагنونной моды в KNiF_3 [40], а индуцированное изменение обменного взаимодействия составляла $\Delta J/J = 0,008$. Реалистичность такого значения $\Delta J/J$ обсуждается ниже в разделе 2.3. Как видно из расчетных зависимостей $\langle \hat{\mathbf{S}}_i(t) \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta_x}(t) \rangle$ от времени t после возбуждения и поляризации накачки θ , импульс накачки, падающий вдоль оси z и поляризованный вдоль x - или y -связи, возбуждает колебания спиновых корреляций. Основная частота колебаний $2\Omega_{\text{max}}/2\pi = 25$ ТГц и определяется преимущественно магнонами на границе зоны Бриллюэна. Кажущееся затухание колебаний является результатом суперпозиции множества мод с разными волновыми векторами $\mathbf{k}$ и разными $\Omega_{\mathbf{k}}$. Максимум спектра и потеря когерентности двухмагнанных мод более подробно рассмотрены в Главе 4.

Рисунок 2.2(b) схематически иллюстрирует связь между знаком возмущения обмена и начальной фазой спиновых корреляций. Мгновенное увеличение обменного взаимодействия между спинами вдоль оси x , вызванное импульсом накачки, поляризованным вдоль этой же оси ($\theta = 0^\circ$), возбуждает динамику спиновых корреляций вдоль этой оси, таким образом, что спиновая корреляция изначально отклоняется ближе к значению, соответствующему синглетному состоянию. И наоборот, как показано на Рис. 2.2(a), импульс накачки вдоль оси y ($\theta = 90^\circ$), возмущающий только обменные связи вдоль оси y изменяет начальную фазу корреляций x -, приближая к неелевскому состоянию.

Действительно, даже с точки зрения закона сохранения энергии, все фазы осцилляций спиновых корреляций не могут быть одинаковы, так как сумма спиновых корреляций должна сохраняться после воздействия импульса накачки. Для двумерного случая было показано, что осцилляции спиновых корреляций вдоль осей x и y имеют противоположные фазы и равные амплитуды, что объясняется симметрией решетки и непоглощающим характером взаимодействия света с системой [44]. Из представленных численных результатов видно, что та

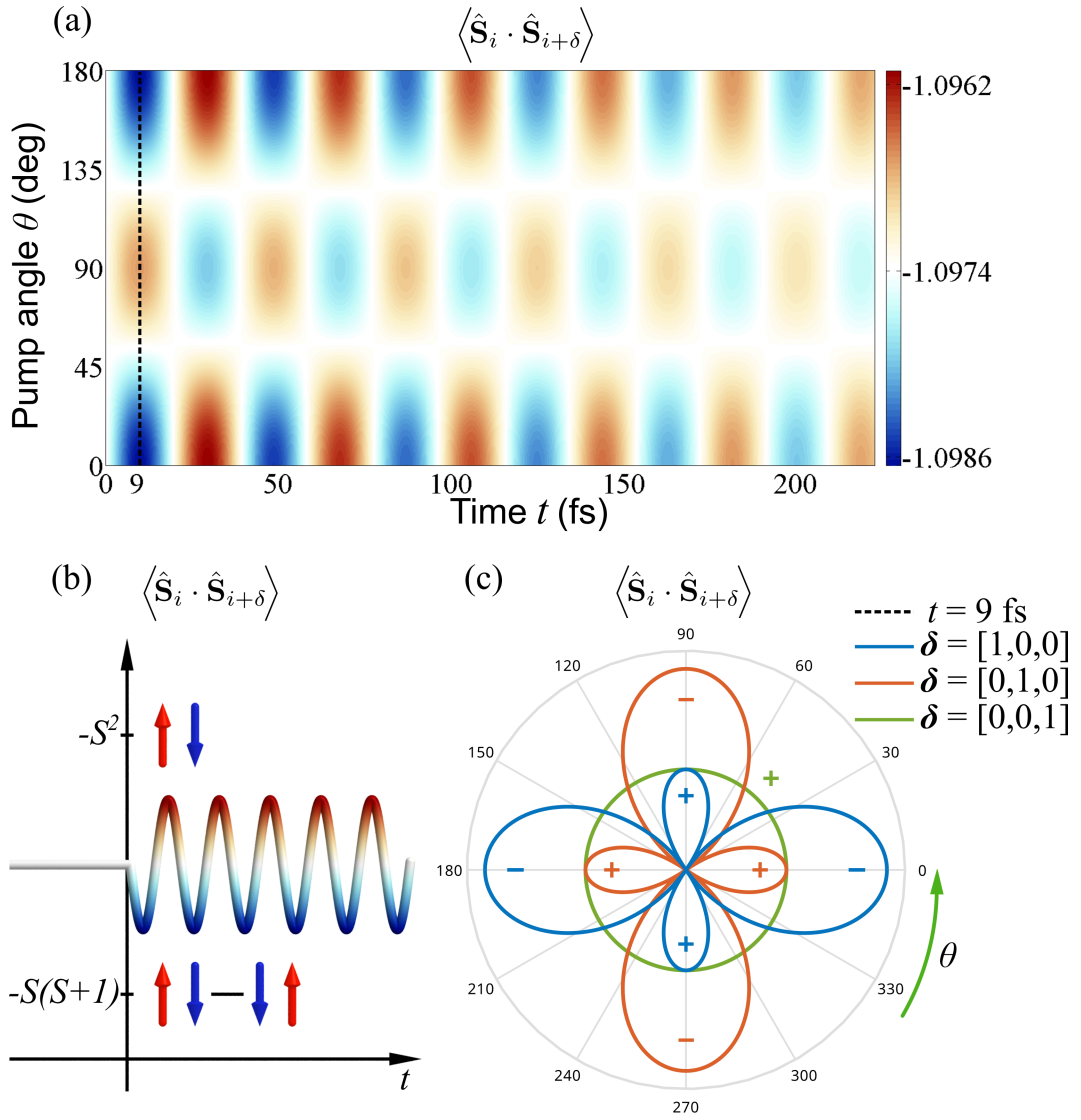


Рисунок 2.2 — (a) Динамика спиновых корреляций между ближайшими соседями вдоль оси x в зависимости от угла поляризации импульса накачки θ . Расчеты проведены при обменном взаимодействии $J = 8.8$ мэВ, температуре $T = 0$ К, лазерно-индуцированном возмущении $\Delta J = 0.008J$ и длительности накачки $2\tau_p = 10$ 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.

же асимметрия по фазе присутствует и в 3D, но амплитуды осцилляций спиновых корреляций больше не равны. На Рис. 2.2(c) представлено, как начальная фаза и амплитуда спиновых корреляций вдоль различных направлений зависят от поляризации накачки θ . Здесь $\langle \hat{\mathbf{S}}_i(t) \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta_v}(t) \rangle$ построен при $t = 9$ фс, для которого возникает первый максимум колебания [Рис. 2.2(a)]. Важно, что

возмущение обменного взаимодействия вдоль оси x приводит к колебаниям спиновых корреляций вдоль всех трёх связей, причем амплитуда наибольшая для x -связи, а для y - и z -связи осцилляции идут в противофазе и с вдвое меньшей амплитудой.

2.2.2 Динамика антиферромагнитного вектора

В предыдущем разделе обсуждалось, что сумма всех корреляций $\sum_{\delta} \langle \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta} \rangle$, не зависит от времени и соответствует закону сохранения полной энергии. Это справедливо не только для скалярного произведения, но, в случае изотропного обменного взаимодействия, и для z -компонент корреляций: $\sum_{\delta} \langle \hat{S}_i^z \hat{S}_{i+\delta}^z \rangle$. Следовательно, макроскопическая характеристика дальнего магнитного порядка, антиферромагнитный вектор, определяется уравнением (2.5) и не зависит от времени. Как утверждается в [39; 40], возбужденная двухмагнонная мода должна проявляться в продольной динамике $\langle L^z \rangle$. Однако численные расчеты показывают, что колебания $\langle L^z \rangle$ при возмущениях обменных взаимодействий отсутствуют, в соответствии с тем, что как $\hat{H}$, так и взаимодействие света с веществом $\Delta \hat{H}$ инвариантны относительно вращений спина. Аналогично, $\langle L^x \rangle$ и $\langle L^y \rangle$ остаются нулевыми из-за высокой симметрии системы.

Чтобы проиллюстрировать происхождение этого результата, был проанализирован упрощенный случай квадратной решетки [Рис. 2.3(a)]. В этом случае выражение для изменения $\langle L^z(t) \rangle$ можно записать как

$$\Delta \langle L^z(t) \rangle = \sum_{\mathbf{k}} \mathcal{A}_{\mathbf{k}} \sin(2\Omega_{\mathbf{k}} t); \quad (2.20)$$

$$\mathcal{A}_{\mathbf{k}} = -\frac{\Delta J S \zeta \sigma_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}} (\xi_{\mathbf{k}} - \gamma_{\mathbf{k}})}{\hbar (1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2)} 4 \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^z \rangle, \quad (2.21)$$

где параметры, входящие в выражение для амплитуды $\mathcal{A}_{\mathbf{k}}$, имеют вид $\gamma_{\mathbf{k}} = \frac{1}{2} \cos(k^x \delta^x) + \frac{1}{2} \cos(k^y \delta^y)$ и $\xi_{\mathbf{k}} - \gamma_{\mathbf{k}} = ((e^x)^2 - \frac{1}{2}) \cos(k^x \delta^x) + ((e^y)^2 - \frac{1}{2}) \cos(k^y \delta^y)$. Применив зеркальное преобразование R вдоль оси (1,1), получаем, что $\gamma_{\mathbf{k}}$ и $\xi_{\mathbf{k}} - \gamma_{\mathbf{k}}$ преобразуются как $R(\gamma_{\mathbf{k}}) = \gamma_{\mathbf{k}}$ и $R(\xi_{\mathbf{k}} - \gamma_{\mathbf{k}}) = ((e^x)^2 - \frac{1}{2}) \cos(k^y \delta^y) + ((e^y)^2 - \frac{1}{2}) \cos(k^x \delta^x)$. В результате сумма в правой части уравнения (2.20) по 1-й зоне Бриллюэна равна нулю. Чтобы проиллюстрировать это, на Рис. 2.3(b) показана величина $\mathcal{A}_{\mathbf{k}}$, рассчитанная численно для различных волновых векторов

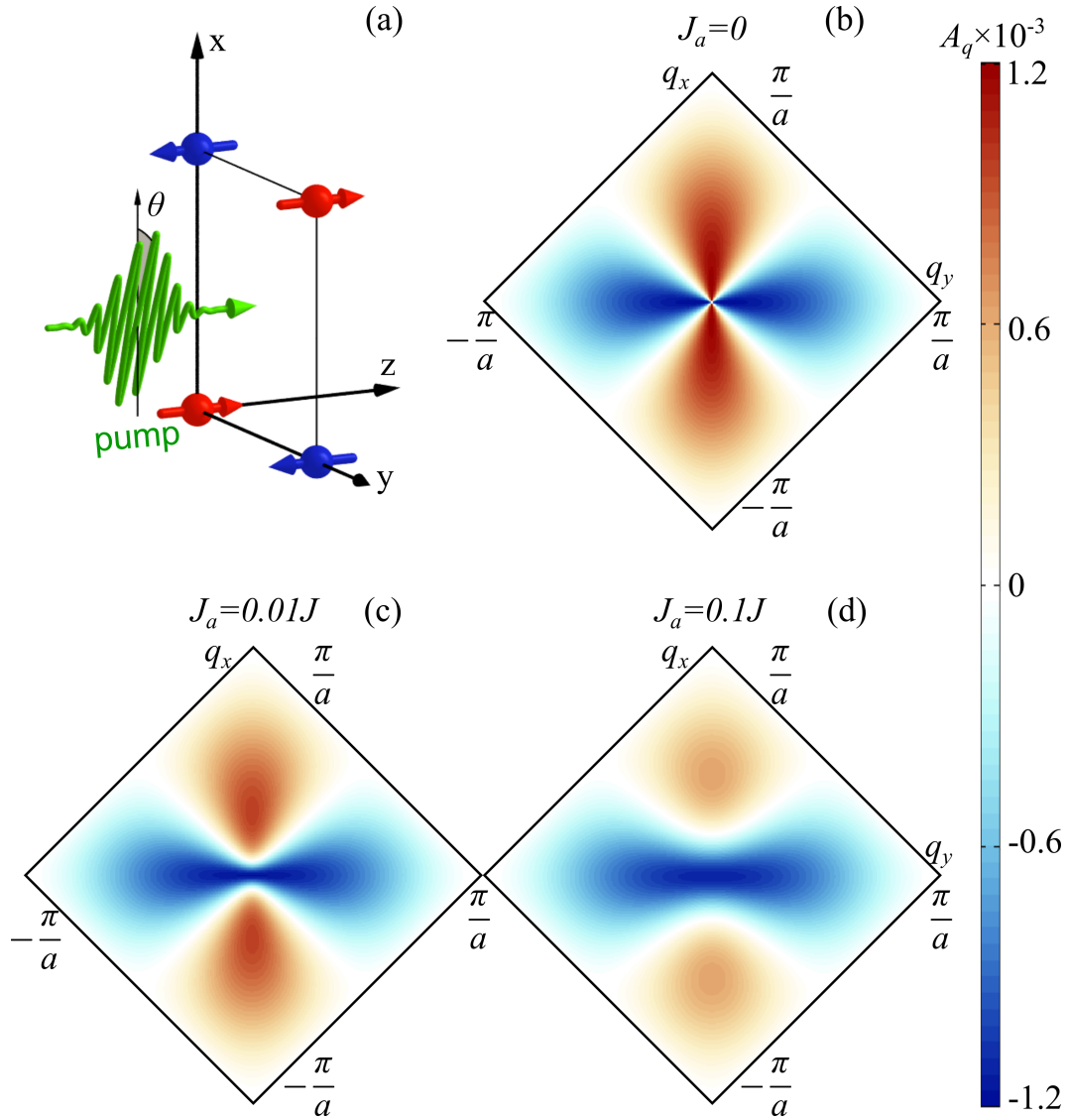


Рисунок 2.3 — (a) Иллюстрация двумерной антиферромагнитной структуры с квадратной решеткой. Амплитуда колебаний $A_{\mathbf{k}}$ z -проекции спиновых корреляций в 1-й зоне Бриллюэна (b), без спиновой анизотропии ($J_a = 0$), (c,d) с анизотропией ($J_a = 0,01J$, $J_a = 0,1J$ соответственно). Расчеты проводятся для того же набора параметров, что и на Рис. 2.2. Поляризация импульса накачки $\theta = 0^\circ$.

в первой зоне Бриллюэна. Из представленных данных видно, что симметрия системы приводит к отсутствию макроскопической динамики $\langle L^z \rangle$. Аналогичный анализ можно применить к первой зоне Бриллюэна трехмерного кубического антиферромагнетика и получить тот же результат. Таким образом, данный анализ результатов показывает, что спиновая динамика, возбуждаемая лазерно-индуцированным возмущением обменного взаимодействия в изотропном кубическом кристалле, заключается в ТГц колебаниях микроскопической характеристики

магнитной системы - спиновых корреляций, но не приводят к колебаниям макроскопического параметра порядка.

2.2.3 Динамика диэлектрической проницаемости и поляризации зондирующего импульса

В данном разделе проведена оценка возмущения диэлектрической проницаемости на центральной частоте ω зондирующего импульса. В соответствии с уравнением (2.19) изменение диэлектрической проницаемости связано с изменением спиновых корреляций

$$\Delta\epsilon^{\mu\nu}(t) = \sum_{\delta} \frac{2J \Delta \langle \hat{\mathbf{S}}_i(t) \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta}(t) \rangle}{(U^2 - \hbar^2 \omega^2)} \frac{Q^2 \delta^\mu \delta^\nu}{\epsilon_0 a^3}. \quad (2.22)$$

Для рассматриваемой кубической структуры тензор диэлектрической проницаемости в равновесии диагонален: $\epsilon^{xx} = \epsilon^{yy} = \epsilon^{zz} = \epsilon^0$. Возбуждение динамики спиновых корреляций приводит к возмущению компонент диагонального тензора с доминирующей частотой, соответствующей пику в спектре двухмагнонной моды $2\Omega_{\max}$

$$\epsilon(t) = \begin{pmatrix} \epsilon^{xx} + \Delta\epsilon^{xx}(t) & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon^{yy} + \Delta\epsilon^{yy}(t) & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon^{zz} + \Delta\epsilon^{zz}(t) \end{pmatrix}, \quad (2.23)$$

где $\Delta\epsilon^{xx} \neq \Delta\epsilon^{yy} \neq \Delta\epsilon^{zz}$, то есть динамика спиновых корреляций может приводить к возникновению оптической анизотропии в оптически изотропных антиферромагнетиках. Если в равновесном состоянии спиновые корреляции давали изотропный вклад в магнитную рефракцию, то в результате возбуждения этот эффект становится анизотропным.

На Рис. 2.4(а) показаны амплитуда и фаза возмущения компонент диэлектрического тензора в зависимости от угла поляризации накачки θ , рассчитанная при $t=9$ фс, соответствующему максимуму лазерно-индуцированных осцилляций спиновых корреляций [Рис. 2.2(а,с)]. Из представленного рисунка можно сделать два важных вывода. Во-первых, Рис. 2.4(а) показывает, что лазерно-индуцированная динамика спиновых корреляций приводит к оптической анизотропии. Например, когда импульс накачки поляризован при $\theta = 0^\circ$,

$\Delta\epsilon^{xx} = -2\Delta\epsilon^{yy} = -2\Delta\epsilon^{zz}$. Во-вторых, сравнивая Рис. 2.2(с) и Рис. 2.4(а), можно заметить, что существует взаимно однозначное соответствие между амплитудой и начальной фазой осцилляций спиновых корреляций для μ -связи и модуляции компоненты тензора диэлектрической проницаемости $\Delta\epsilon^{\mu\mu}$. Качественно понять природу возникновения лазерно-индуцированной оптической анизотропии в отсутствии спин-орбитального взаимодействия можно через перестановку двух электронов в модели Хаббарда, как показано на Рис. 1.3(с). Для простоты был рассмотрен двумерный случай и показана только решетка 4×4 [Рис. 1.3(с)]. Как обсуждалось в разделе 1.2, возбуждение спиновой системы импульсом накачки, поляризованным вдоль x -связи, приводит к взаимным перескокам электронов между двумя ближайшими узлами [Рис. 1.3(с)]. Результатом этих перескоков является возмущение основного состояния с появлением соседей с сонаправленными спинами [Рис. 1.3(с)]. Поскольку перескок между ними запрещен принципом Паули, пары таких узлов исключаются из взаимодействия электрического поля зондирующего импульса с системой. Как легко видеть на Рис. 1.3(с), количество таких пар различно вдоль осей x - и y -, что приводит к оптической анизотропии в плоскости xy - даже в пределах электродипольного приближения.

Таким образом, спиновая динамика, вызванная лазерным возмущением обменного взаимодействия, проявляется в динамике такой макроскопической характеристики среды, как диэлектрическая проницаемость. В общем, анизотропная модуляция диэлектрической проницаемости, т. е. индуцированная оптическая анизотропия, приводит к модуляции интенсивности и поляризации прошедшего или отраженного зондирующего импульса. В случае прозрачного изотропного антиферромагнетика изменение коэффициента пропускания вдоль различных направлений приведет к эффективному повороту поляризации зондирующего импульса, который не будет зависеть от толщины образца. В то же время, изначально линейно поляризованный зондирующий импульс станет эллиптическим, и величина эллиптичности будет увеличиваться с толщиной кристалла. Для зондирующего импульса, распространяющегося вдоль оси z [Рис. 2.1(а)] образца толщиной d , существует простое выражение для индуцированного вращения и эллиптичности: как функция поляризации входящего

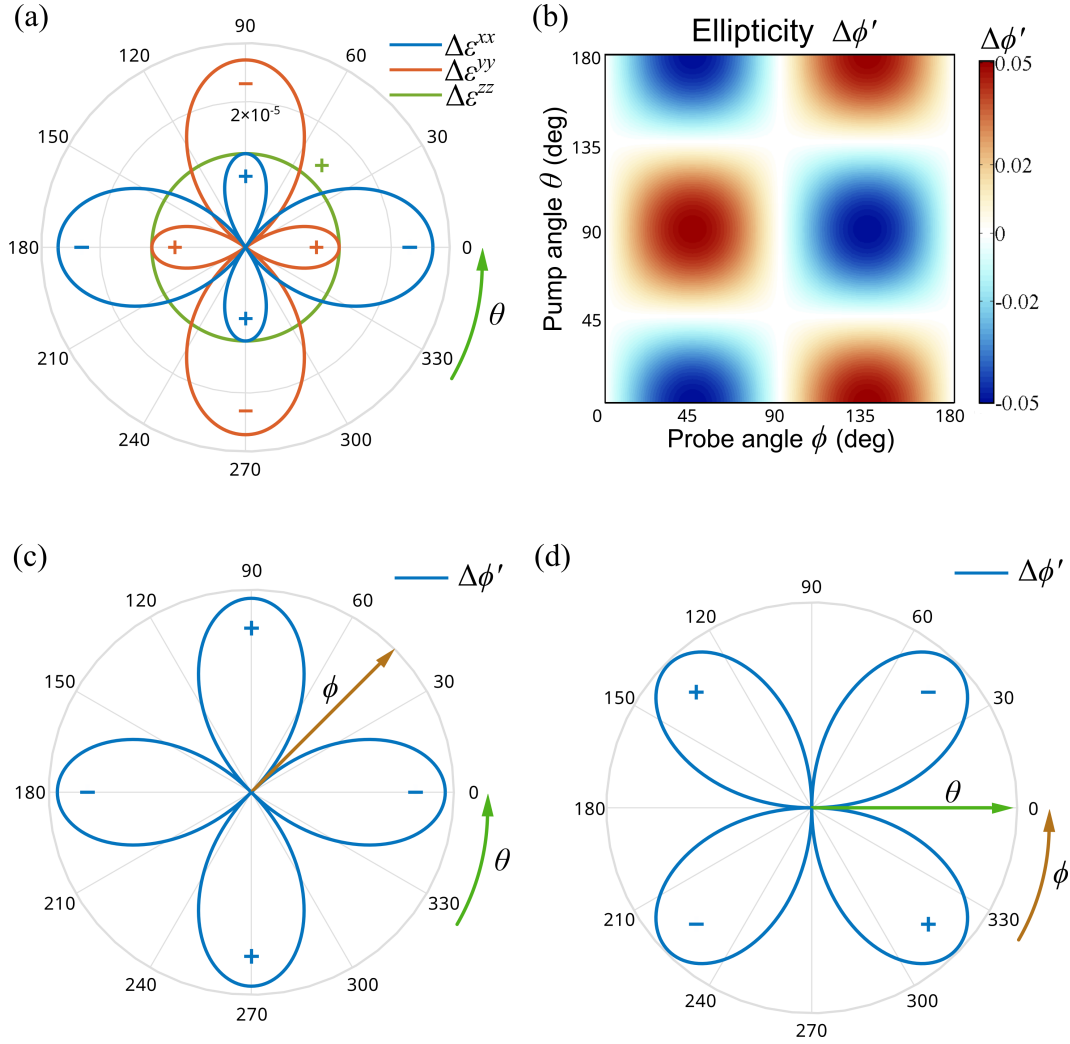


Рисунок 2.4 — Амплитуда лазерно-индуцированных колебаний компонент тензора диэлектрической проницаемости (а) и эллиптичности зондирующего импульса $\Delta\phi'(t)$ (b) в зависимости от поляризации накачки и пробирования. (с) и (d) представлены сечения карты эллиптичности, (с) при фиксированной поляризации зондирующего импульса вдоль диагонали тела ($\phi = 45^\circ$) и (d) при фиксированной поляризации импульса накачки вдоль оси x ($\theta = 0$). Знаки на панелях (а,с,d) и цвета на панелях (b) обозначают начальную фазу колебаний.

импульса ϕ [52]

$$\Delta\phi(t) = \frac{\Delta\epsilon^{xx}(t) - \Delta\epsilon^{yy}(t)}{2(\sqrt{\epsilon^{xx}} + 1)} \sin(2\phi); \quad (2.24)$$

$$\Delta\phi'(t) = \frac{\omega d [\Delta\epsilon^{xx}(t) - \Delta\epsilon^{yy}(t)]}{4c\sqrt{\epsilon^{xx}}} \sin(2\phi), \quad (2.25)$$

где не включены эффекты интерференции, а модуляция диэлектрической проницаемости мала, $|\Delta\epsilon^{\mu\nu}(t)| \ll \epsilon^{xx}$.

Путем подстановки решения для спиновых корреляций [Ур. (2.17,2.18)] в уравнения (2.24,2.25), была численно рассчитана амплитуда колебаний эллип-

тичности зондирующего импульса $\Delta\varphi'(t)$ для различных углов поляризации накачивающего и зондирующего импульса, θ и φ соответственно. Результат показан на Рис. 2.4(b,c), где оба импульса распространяются вдоль оси z .

На рисунке 2.4(b) представлена полная карта амплитуд осцилляций эллиптичности на частоте двухмагнонной моды в зависимости от поляризаций импульсов накачки и пробирования. Выбор геометрии с импульсами накачки и пробирования, поляризованными вдоль и под углом 45° относительно обменных связей ближайших соседей соответственно, дает максимальную чувствительность к динамике спиновых корреляций. Стоит отметить, что эллиптичность и поворот поляризации линейно зависят от величины индуцированной оптической анизотропии. Однако, коэффициенты входящие в их выражения [Ур. (2.24,2.25)] имеют схожий порядок лишь в случаях тонких кристаллов порядка 1 мкм. Для более толстых образцов модуляция эллиптичности будет более выраженной по сравнению с вращением.

2.2.4 Влияние магнитной анизотропии

Как показано в разделе 2.2.1, в изотропном кубическом антиферромагнетике возмущение обменного взаимодействия ультракороткими лазерными импульсами приводит к динамике спиновых корреляций. Последнее, в свою очередь, проявляется через модуляцию такого макроскопического параметра, как тензор диэлектрической проницаемости. В то же время отсутствует продольная динамика параметра магнитного порядка - антиферромагнитного вектора. Однако у большинства антиферромагнетиков имеется предпочтительная ориентация спинов, связанная с наличием магнитокристаллической анизотропии. Поэтому имеет смысл проверить, сохраняется ли описанная выше ситуация в кубическом антиферромагнетике, обладающем магнитной анизотропией.

В данном разделе была рассмотрена одноосная анизотропия типа легкой оси, ось которой совпадает с осью квантования z . Тогда, в рамках линейной теории спиновых волн, магнитокристаллическая анизотропия может быть введена в гамильтониан [Ур. (1.1)] как

$$\hat{H} = J \sum_{i\delta} \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta} + J_a \sum_{i\delta} \hat{S}_i^z \hat{S}_{i+\delta}^z. \quad (2.26)$$

Стоит отметить, что, хотя магнитокристаллическая анизотропия определена для одного магнитного иона, форма дополнительного члена в уравнении (2.26) дает тот же вклад в двухмагнетонный гамильтониан [Ур. (2.2)]. Как и в изотропном случае, считается, что лазерное возбуждение приводит к возмущению параметра обмена J между ближайшими соседями, когда импульс поляризован вдоль соответствующей связи (Eq. (1.22)). Введение магнитной анизотропии приводит к модификации параметров $\Omega_{\mathbf{k}}$, $\gamma_{\mathbf{k}}$ и $V_{\mathbf{k}}$ [Ур. (1.6,2.8)] системы и возбуждения следующим образом:

$$\Omega_{\mathbf{k}}^* = \frac{z(J + J_a)S}{\hbar} \sqrt{1 - (\gamma_{\mathbf{k}}^*)^2}; \quad (2.27)$$

$$\gamma_{\mathbf{k}}^* = \frac{J}{J + J_a} \gamma_{\mathbf{k}}; \quad (2.28)$$

$$V_{\mathbf{k}}^* = \frac{\zeta \Delta JS}{\hbar} \frac{\xi_{\mathbf{k}} - \gamma_{\mathbf{k}}^*}{\sqrt{1 - (\gamma_{\mathbf{k}}^*)^2}}; \quad (2.29)$$

$$\sigma_{\mathbf{k}}^* = \sqrt{\pi} \tau_p e^{-(\Omega_{\mathbf{k}}^*)^2 \tau_p^2}. \quad (2.30)$$

Изменения параметров $\Omega_{\mathbf{k}}^*$, $\gamma_{\mathbf{k}}^*$ и $V_{\mathbf{k}}^*$ влияют на результаты для лазерно-индуцированной динамики спиновых корреляций. Однако общие особенности, такие как зависимость от поляризации накачки θ , качественно остаются прежними. При этом модуляция тензора диэлектрической проницаемости, связанная со спиновыми корреляциями, сохраняет свой характер, т. е. происходит только модуляция диагональных компонент тензора с разной величиной и знаком [Ур. (2.23)].

Наиболее важное отличие от изотропного случая возникает, когда мы рассматриваем продольную динамику антиферромагнитного вектора:

$$\begin{aligned} \Delta \langle L^z(t) \rangle &= \sum_{\mathbf{k}} \mathcal{A}_{\mathbf{k}}^* \sin(2\Omega_{\mathbf{k}}^* t); \\ \mathcal{A}_{\mathbf{k}}^* &= -\frac{\Delta JS \zeta \sigma_{\mathbf{k}}^* \gamma_{\mathbf{k}}^* (\xi_{\mathbf{k}} - \gamma_{\mathbf{k}}^*)}{\hbar (1 - (\gamma_{\mathbf{k}}^*)^2)} \\ &\approx \mathcal{A}_{\mathbf{k}} - \frac{J_a}{J + J_a} \frac{\Delta JS \zeta \sigma_{\mathbf{k}}}{\hbar} \frac{\gamma_{\mathbf{k}}^2}{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}. \end{aligned} \quad (2.31)$$

Численные расчеты с использованием уравнений (2.5,2.17,2.18) показывают, что в анизотропном антиферромагнетике лазерно-индуцированная динамика спиновых корреляций, приводит к колебаниям длины антиферромагнитного вектора [Рис. 2.3]. Однако, максимум амплитуды этих осцилляций

расположен в центре зоны Бриллюэна, где частоты оказываются гораздо меньше частот на границе зоны. Такой характер осцилляций объясняется симметричным слагаемым для $\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^*$. Более того, в отличие от ситуации со спиновыми корреляциями, колебания антиферромагнитного вектора не зависят от поляризации накачки. Начальная фаза колебаний $\Delta \langle L^z(t) \rangle$ показывает, что система сначала движется в направлении снижения дальнего порядка (поправка к $\mathcal{A}_{\mathbf{k}}$ отрицательная), с последующими колебаниями вокруг равновесного значения L^z , уменьшенного по сравнению с классическим значением $2S$ из-за квантовых флуктуаций. Это согласуется с поведением спиновых корреляций [Рис. 2.3(b)].

Возникновение продольной динамики антиферромагнитного вектора в кубическом кристалле с магнитной анизотропией можно проиллюстрировать, рассмотрев упрощенный двумерный случай [Рис. 2.3(a)] и используя уравнение (2.20) с измененными параметрами. На Рис. 2.3(c,d) показано распределение амплитуд $\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^*$ по 1-й зоне Бриллюэна для двух значений J_a/J . Наличие магнитной анизотропии приводит к дополнительному изотропному вкладу в $\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^*$, нарушению зеркальной симметрии относительно оси (1,1). Обнаружено, что этот дополнительный вклад в $\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^*$ не зависит от поляризации накачки, что приводит к отсутствию зависимости колебаний антиферромагнитного вектора от θ .

Важно подчеркнуть, что полученный результат по динамике антиферромагнитного вектора не зависит от ориентации оси анизотропии. Таким образом, импульс накачки, распространяющийся в произвольном направлении в анизотропном кубическом антиферромагнетике, будет возбуждать динамику спиновых корреляций, определяемую ориентацией электрического поля импульса накачки по отношению к различным связям, и независимую от поляризации накачки продольную динамику антиферромагнитного вектора. Оба типа возбужденной спиновой динамики можно исследовать оптически, выбрав правильное направление распространения и поляризацию зондирующего импульса. Динамика антиферромагнитного вектора изменяет оптические свойства посредством магнитного линейного двулучепреломления - эффекта спин-орбитального происхождения, не учитываемого в данной микроскопической модели. По этой причине анализ лазерно-индуцированных колебаний $\langle L^z(t) \rangle$ рассмотрен в рамках феноменологического подхода, основанного на симметрии пространства-времени [14].

В рассматриваемой геометрии [Рис. 2.1(a)] зависящий от времени антиферромагнитный вектор индуцирует дополнительную разницу между компо-

нентами диэлектрического тензора $\varepsilon^{xx(yy)}(t) - \varepsilon^{zz}(t) = b(\langle L^z(t) \rangle)^2 \approx b\langle L^z \rangle^2 + 2b\langle L^z \rangle \langle \Delta L^z(t) \rangle$, где b — магнитооптический коэффициент. Таким образом, колебания антиферромагнитного вектора не будут оказывать влияния на поляризацию импульса зондирования, распространяющегося вдоль оси z . В таком случае имеет смысл рассматривать распространение импульсов накачки и зондирования вдоль оси y , тогда

$$\Delta\varphi'(t) = \frac{\omega d}{4c} \left[\frac{\Delta\varepsilon^{xx}(t)}{\sqrt{\varepsilon^{xx} + b\langle L^z(t) \rangle^2}} - \frac{\Delta\varepsilon^{zz}(t)}{\sqrt{\varepsilon^{xx}}} + \frac{2b\langle L^z \rangle}{\sqrt{\varepsilon^{xx} + b\langle L^z(t) \rangle^2}} \langle \Delta L^z(t) \rangle \right] \sin(2\varphi), \quad (2.32)$$

где $\Delta\varepsilon^{xx}$ и $\Delta\varepsilon^{zz}$ непосредственно описывают модуляцию, обусловленную спиновыми корреляциями, и соответствуют $\Delta\varepsilon^{xx}$ и $\Delta\varepsilon^{yy}$ на Рис. 2.4(а). Таким образом, колебания длины антиферромагнитного вектора вносят дополнительный вклад в динамическую эллиптичность зондирующего импульса. Однако этот вклад не зависит от поляризации накачки θ и имеет более низкую частоту, поэтому его можно отличить от вклада $\Delta\varepsilon^{xx}$ и $\Delta\varepsilon^{zz}$.

2.3 Сравнение с экспериментальными данными

В силу наличия различных трактовок и подходов к описанию лазерно-индуцированной магнитной динамики в антиферромагнетиках на частоте двухмагنونной моды, необходимо провести тщательное сравнение результатов, полученных из представленной выше модели, с результатами экспериментальных наблюдений. Предлагаемые в [37; 40] способы описания двухмагنونной динамики имеют ограничения в способности предсказывать амплитуды модуляции зондирующих импульсов, а в некоторых случаях появляются расхождения и в поляризационных зависимостях.

2.3.1 Количественная оценка модуляции оптических параметров среды

В данном разделе представлена оценка величины изменений ΔJ , ожидаемая для интенсивностей импульсов накачки, используемых в типичном эксперименте с прозрачными диэлектриками. В качестве модельного материала рассматривается KNiF_3 , поскольку его магнитная и кристаллическая структура может быть описана структурой, показанной на Рис. 2.1(а). Также для этого материала присутствуют исчерпывающие данные по его параметрам и результатам экспериментов по возбуждению двухмагنونной моды.

KNiF_3 имеет кубическую структуру, а антиферромагнитное упорядочение имеет G-тип и характеризуется единой обменной константой. Антиферромагнитный вектор ориентирован вдоль одной из кубических осей $\langle 100 \rangle$, магнитная анизотропия пренебрежимо мала. Материал оптически прозрачен в ближнем инфракрасном и видимом диапазонах и оптически изотропен в равновесии. Необходимые для расчетов параметры материала J , S , U , a и ϵ^{xx} указаны в Таблице 1. Об экспериментах по возбуждению двухмагنونной моды лазерным импульсом в этом материале сообщалось в [39; 40] [Рис. 2.5]. Параметры экспериментов, такие как интенсивность лазерного импульса F , длительность импульса накачки τ_p , поляризации накачки и зонда, а также амплитуда колебаний поляризации зондирующего импульса $\Delta\phi$, являющихся результатом экспериментов, представлены в Таблице 2. Эксперименты проводились при энергиях фотонов импульсов накачки и пробирования $\hbar\omega_p = 2.2 \text{ eV}$ и $\hbar\omega = 1.3 \text{ eV}$. В этом спектральном диапазоне дисперсией равновесной диэлектрической проницаемости KNiF_3 можно пренебречь и использовать одно значение $\epsilon^{xx} = \epsilon^{yy} = \epsilon^{zz}$. Важно отметить, что в Таблице 2 экспериментальное значение $\Delta\phi$ указано на 1 мкм, тогда как в экспериментах толщина образца составляла $d = 340 \text{ мкм}$.

Поскольку KNiF_3 обладает слабой магнитной анизотропией, основной вклад в измеряемую модуляцию поляризации зондирующего импульса вносит эффект анизотропной магнитной рефракции [Ур. (2.22)], а не колебания антиферромагнитного вектора и связанное с ними магнитное линейное двулучепреломление. Для расчета влияния импульса накачки на обменное взаимодействие

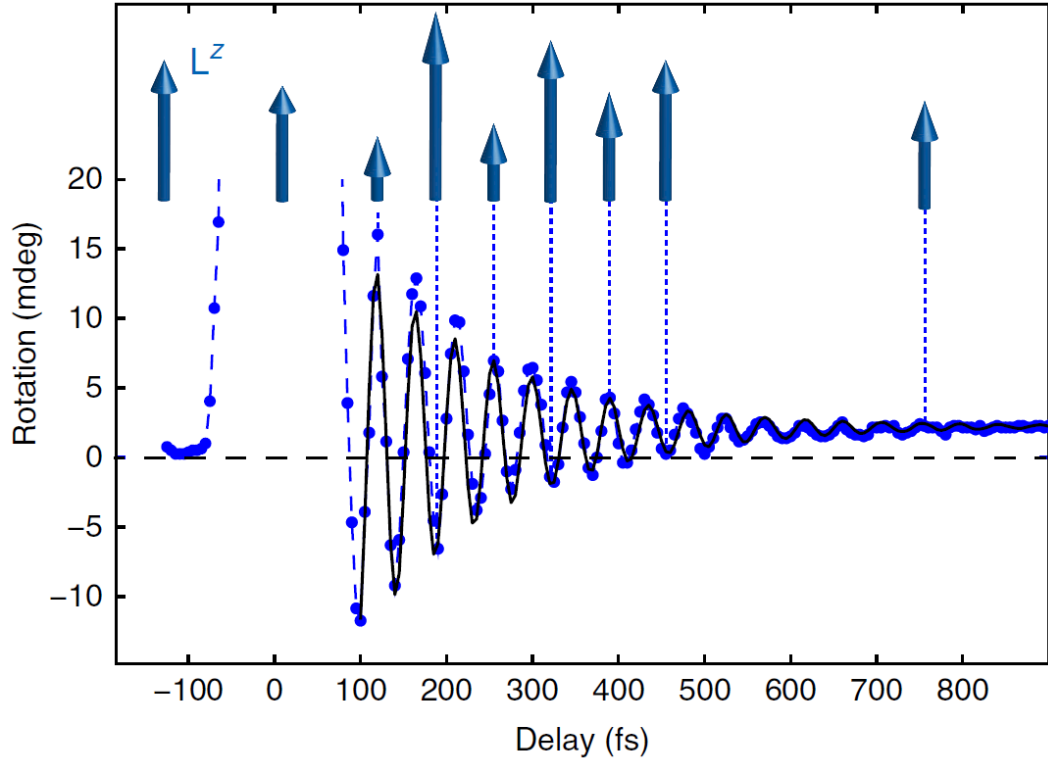


Рисунок 2.5 — Сверхбыстрая динамика поляризации зондирующего импульса в экспериментах по оптическому возбуждению двухмагнанных мод в KNiF_3 .

Рисунок воспроизведен из статьи [39].

J была оценена амплитуда электрического поля импульса накачки E_0 как

$$E_0^2 = \frac{(1 - R)F}{\sqrt{\ln 2} \epsilon_0 \epsilon^{xx} c \tau_p}, \quad (2.33)$$

где c — скорость света в вакууме, а $R = 0.035$ — коэффициент отражения, F — плотность энергии в импульсе накачки.

Используя уравнение (1.21), получено относительное возмущение энергии обменного взаимодействия $\Delta J/J = 0.008$ для $\theta = 0, \pi/2$. В Таблице 2 приведена соответствующая модуляция оптических параметров среды и результирующая модуляция эллиптичности $\Delta\varphi'$ для зондирующего импульса, поляризованного при $\varphi = \pi/4$. Используя уравнение (1.21), получено относительное возмущение обменной энергии $\Delta J/J = 0.008$ для $\theta = 0, \pi/2$.

В экспериментальной работе [39] детектирование реализовано с помощью зондирующих импульсов, поляризованных при $\varphi < \pi/20$, что уменьшает детектируемую амплитуду осцилляций поляризации в $\sim 0,3$ раза по сравнению с найденной для $\varphi = \pi/4$ [Ур. (2.25)]. Действительно, представленные в данной главе расчеты для $\varphi = \pi/20$ дают значение $\Delta\varphi' = 0.016$, что хорошо согласуется с экспериментальными результатами [Таблица 2]. Таким образом, можно

Таблица 2 — Параметры эксперимента и результаты наблюдения лазерно-индуцированной двухмагнной моды в KNiF_3 и результаты, полученные в представленной модели.

теория							
E_0 В/см	τ_p фс	θ рад	$\Delta J/J$	$\Delta \varepsilon^{xx}$	Δn	φ рад	$\Delta \varphi'$ мрад/мкм
$1.9 \cdot 10^9$	5	0	0.008	$2.8 \cdot 10^{-5}$	$9.6 \cdot 10^{-6}$	$\pi/4$ $\pi/20$	0.05 0.016
эксперимент [40]							
F мДж/см ²	τ_p фс	θ рад				φ рад	$\Delta \varphi$ мрад/мкм
8.6	5	0				$< \pi/20$	0.017

утверждать, что результат разработанной теоретической модели количественно описывает результаты экспериментов с KNiF_3 . В разделе 2.3.2 это соответствие дополнительно показано в рамках анализа поляризационных зависимости эллиптичности зондирующего импульса в KNiF_3 .

Чтобы оценить полученное значение $\Delta J/J$ и определить его реалистичность, было проведено сравнение этой величины с изменениями обменного взаимодействия в KNiF_3 при деформации $\Delta a/a$, представленными в литературе [56]. Применяя введенное для KNiF_3 соотношение $J \sim a^{-12}$ [56], получено, что $\Delta J/J = 0.01$ эффективно соответствует деформации сжатия $\Delta a/a \sim 10^{-3}$ — большому, но экспериментально доступному значению.

Установив эквивалентную деформацию, необходимую для достижения изменения обменного взаимодействия на 1%, можно сравнить полученное оптическое двулучепреломление с экспериментальными значениями индуцированного деформацией двулучепреломления для KNiF_3 . Согласно [58], оптическое двулучепреломление, вызванное деформацией 10^{-3} , приложенной вдоль $\langle 001 \rangle$, составляет $|\Delta n| \sim 10^{-4}$ в парамагнитной фазе. и $|\Delta n| < 10^{-4}$ ниже T_N . Рассчитанное оптическое двулучепреломление $|\Delta n| \approx 1 \cdot 10^{-5}$ [Таблица 2] находится в разумном согласии с этим значением, что подтверждает достоверность расчетов оптического двулучепреломления, индуцированного изменениями ΔJ .

Таким образом, сравнивая результаты представленных расчетов с экспериментальными данными по лазерно-индуцированной двухмагнной моде и со статической модуляции параметра обмена и оптического двулучепреломления

за счет деформации, была получена реалистичная оценка воздействия лазерного импульса на J , которая достигает $\approx 1\%$ для плотности энергии в лазерном импульсе, обычно используемой в экспериментах по методу накачки-зондирования.

2.3.2 Симметричный анализ

Антиферромагнетик с кубической решеткой KNiF_3

Комплексное экспериментальное исследование лазерной двухмагнонной моды в KNiF_3 [39; 40] также дает основу для анализа применимости представленной модели с точки зрения симметрии эффекта. Сообщалось о нескольких ключевых наблюдениях по возбуждению и обнаружению двухмагнонной моды в этом материале. Во-первых, сообщалось, что осцилляции поляризации зондирующего импульса на частоте двухмагнонной моды зависят от поляризации импульса накачки. Для эффективного возбуждения импульсы накачки были поляризованы вдоль $\langle 100 \rangle$, т.е. вдоль δ для этого материала. Это хорошо согласуется с расчетами, представленными в этой главе, как показано на Рис. 2.2(с). Во-вторых, начальная фаза регистрируемых колебаний эллиптичности зондирующего импульса менялась на π при повороте поляризации накачки от одной оси к другой. Опять же, такая выраженная зависимость динамики обнаруженной поляризации зондирующего импульса от поляризации импульса накачки позволяет предположить, что макроскопическим параметром, ответственным за измеряемый сигнал, является наведенное оптическое двулучепреломление [Ур. (2.22)], а не магнитное линейное двулучепреломление, возникающее из-за колебаний $\langle L^z(t) \rangle$. Последнее должно отсутствовать из-за слабой анизотропии системы. Таким образом, экспериментальные результаты, опубликованные в [40], подтверждают один из основных выводов представленного анализа, согласно которому индуцированное оптическое двойное лучепреломление является ведущим макроскопическим проявлением лазерной двухмагнонной моды.

Важно отметить, что авторы [39; 40] отнесли колебания поляризации зондирующего импульса к колебаниям $\langle L^z(t) \rangle$, что привело к необходимости

введения дополнительного понижения симметрии системы в модель. Действительно, индуцированные колебания $\langle L^z(t) \rangle$ не зависят от поляризации импульса накачки как в представленном анализе, так и в анализе, опубликованном в [40]. Поэтому для объяснения выраженной зависимости сигнала от поляризации накачки в [40] было высказано предположение, что дополнительные магнитоупругие деформации или спин-орбитальные эффекты способствуют разным знакам ΔJ при поляризации импульса накачки вдоль и перпендикулярно равновесному направлению $\mathbf{L}$.

Антиферромагнетики с тетрагональной решеткой MnF_2 , FeF_2 и CoF_2

Применимость представленного анализа к антиферромагнетикам с некубической структурой решетки можно продемонстрировать, рассмотрев результаты по возбуждению и обнаружению двухмагنونной моды во фторидах переходных металлов MnF_2 , FeF_2 [37; 38], и CoF_2 [59], обладающих тетрагональной рутиловой структурой. Преобладающее обменное взаимодействие в этих антиферромагнетиках происходит между спинами, принадлежащими разным подрешеткам с $\delta \parallel \langle 111 \rangle$, а антиферромагнитный вектор ориентирован вдоль оси [001]. В зависимости от иона переходного металла материалы обладают более сильной (CoF_2) или более слабой (MnF_2) магнитной анизотропией. Все эти материалы оптически анизотропны, причем [001] является оптической осью.

В экспериментах, описанных в [37; 38], импульсы накачки и зондирования распространялись вдоль оси [001]. Таким образом, равновесная оптическая анизотропия в плоскости (001) отсутствует, и анализ оптического отклика, связанного с лазерной динамикой спиновых корреляций [Ур. (2.23-2.25)] остается применимым. Поляризация импульса накачки была выбрана вдоль направления [110], совпадающего с проекцией δ на плоскость (001). Хотя зависимость детектируемого сигнала от поляризации импульса накачки не указана, выбранная поляризация согласуется с результатом представленного анализа, согласно которому электрическое поле импульса накачки должно иметь проекцию на δ , чтобы влиять на перескоки t_{ij} и, таким образом, получить ненулевой ΔJ . Измерялось дифференциальное пропускание зондирующих импульсов, поляризованных вдоль и перпендикулярно импульсу накачки, что

соответствует вращению поляризации зондирующего импульса, описываемому уравнением (2.24). В соответствии с представленным анализом, зондирующий импульс изначально был поляризован под углом 45° по отношению к импульсам накачки и, таким образом, был наиболее чувствителен к наведенной оптической анизотропии на двухмагنونной частоте. Продольная динамика антиферромагнитного вектора, ориентированного вдоль оси $[001]$, не может быть оптически исследована в этой геометрии. Стоит отметить, что выбор поляризаций импульсов накачки и зондирования в [37; 38] был сделан исходя из симметрии двухмагنونной моды и соответствующего рамановского тензора, который будет рассмотрен более подробно в Главе 4.

В работе [59] импульсы накачки и зондирования распространялись в кристалле CoF_2 вдоль оси $[010]$, а равновесное оптическое двулучепреломление сильно влияло на поляризацию, что делает прямое сравнение экспериментальных результатов с представленной теорией сложным. Однако данная геометрия представляет особый интерес, поскольку модуляция параметров зондирующего импульса может быть обусловлена как изменением оптического двулучепреломления $\Delta\epsilon^{\mu\nu}(t)$, так и продольной динамикой $\langle L^z(t) \rangle$. Авторы сообщили, что обнаружение лазерно-индуцированной двухмагنونной моды, реализуемой путем измерения вращения зондирующего импульса на пропускание, возможно при поляризации зондирующего импульса вдоль оси $[001]$. Когда зондирующий импульс был поляризован под углом 45° , регистрируемый сигнал исчезал. С одной стороны, такое наблюдение противоречит сценарию, в котором продольная динамика антиферромагнитного вектора детектируется посредством магнитного линейного двулучепреломления. Действительно, чтобы наблюдать такой вклад, необходимо использовать зондирующие импульсы, поляризованные под углом 45° к антиферромагнитному вектору, т. е. к оси $[001]$. С другой стороны, зондирующие импульсы, поляризованные вдоль осей $[100]$ или $[001]$, как они были выбраны в описанных экспериментах, будут чувствительны к дополнительному оптическому двулучепреломлению, индуцированному между направлениями $\langle 101 \rangle$ в плоскости (010) . Таким образом, экспериментальные результаты по лазерно-управляемой двухмагنونной моде в CoF_2 [60] позволяют предположить, что оптическое двулучепреломление остается доминирующим макроскопическим проявлением возбужденной динамики спиновых корреляций даже в материале с сильной магнитной анизотропией. Стоит отметить, что из данных не удалось извлечь выраженной поляризационной зависимости

при $2\Omega_{\text{max}}$, что является следствием статического оптического двулучепреломления, плохого соотношения сигнала-шума, а также близостью частоты оптического фонона, дающего сильный вклад в модуляцию оптического двулучепреломления. Однако несколько более сильные сигналы наблюдались при импульсах накачки, поляризованных вдоль $[101]$, т.е. когда имеется максимальная проекция электрического поля импульс накачки на $\delta\|\langle 111 \rangle$. Таким образом, в целом все результаты, полученные для фторидов переходных металлов, хорошо описываются представленной моделью, хотя кристаллическая структура этих материалов отличается от кубической решетки.

2.4 Основные выводы к Главе 2

В данной главе, на основе минимальной модели прозрачного кубического антиферромагнетика разработано теоретическое описание процессов возбуждения, динамики и регистрации спиновых корреляций фемтосекундными лазерными импульсами. Несмотря на простоту представленной модели, с ее помощью можно изучать отклик сильно коррелированных систем, которые согласуются с существующими экспериментальными данными. Полученный теоретический аппарат, позволяет описать, как импульсное возмущение обменного взаимодействия электрическим полем фемтосекундного лазерного импульса вызывает осцилляции спиновых корреляций с различными начальными фазами и амплитудами для связей вдоль и перпендикулярно электрическому полю импульса. Под осцилляциями можно понимать периодическое смещение спиновых корреляций по одной из осей, ближе к значениям локальных синглетных или неелевских состояний, и спиновых корреляций по двум другим осям в противоположных направлениях, при этом система в целом остается близкой к макроскопическому состоянию Нееля. Также получена полная зависимость динамики спиновых корреляций от поляризации импульса накачки и показано, что именно ориентация электрического поля импульса относительно связей между ближайшими соседями определяет эту зависимость.

Далее было показано, что в кубических антиферромагнетиках без магнитной анизотропии возмущение обменного взаимодействия не приводит к динамике антиферромагнитного вектора, и, таким образом, динамика спиновых

корреляций не может быть объяснена в терминах классических макроскопических параметров, таких как ферромагнитный и антиферромагнитный вектор. Это противоречит ранее предложенному сценарию, согласно которому колебания антиферромагнитного вектора являются макроскопическим проявлением лазерного возбуждения двухмагнетонной моды [39; 40]. Показано, что включение в модель сильной одноосной анизотропии приводит к возникновению лазерно-индуцированной динамики антиферромагнитного вектора, поскольку спин-орбитальное взаимодействие, определяющее магнитную анизотропию, нарушает независимость между спиновой и решеточной подсистемами. Однако этот вклад появляется только в следующем за главным порядке, определяемом малостью спин-орбитальных взаимодействий по отношению к обменным взаимодействиям. Более того, в кубическом кристалле динамика антиферромагнитного вектора не различает возмущений обменного взаимодействия по разным связям и поэтому нечувствительна к поляризации импульса возбуждения.

Разработанная модель также показывает, что макроскопическим проявлением лазерно-индуцированного возмущения обменного взаимодействия и динамики спиновых корреляций в кубических антиферромагнетиках является анизотропная модуляция диагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости. В результате динамика спиновых корреляций может быть обнаружена по эллиптичности или вращению поляризации зондирующего импульса. Опять же, этот эффект определяется симметрией кристалла и не зависит от ориентации антиферромагнитного вектора.

Для обоснования выводов, сделанных на основе разработанной модели, был проведен анализ симметрии и величин лазерно-индуцированной динамики двухмагнетонной моды, представленные в литературе, а также проведено их сравнение с теоретическими предсказаниями. Проанализированы поляризационные зависимости импульсов накачки и зондирования с экспериментальными результатами в кубических (KNiF_3) и тетрагональных (MnF_2 , FeF_2 , CoF_2) антиферромагнетиках. Экспериментальные результаты для KNiF_3 , опубликованные в [40], показывают хорошее согласие с представленной теорией как по величине, так и по симметрии эффекта. Хотя теория развита для кубического кристалла, полученные результаты легко обобщаются на случай centrosymmetric кристаллов. Это имеет большое значение для исследований фторидов переход-

ных металлов, таких как FeF_2 и CoF_2 [37; 38; 60], для которых до сих пор не сообщалось об экспериментальном поляризационном анализе.

Глава 3. Псевдовектор спиновых корреляций и его динамика

В то время, как одномагнонные возбуждения описываются вектором намагниченности и его уравнением движения, для двухмагнонной моды использование антиферромагнитного вектора оказывается некорректным. Таким образом, возникает вопрос о характере динамики и возможности ее описания в рамках подходов аналогичных случаю одномагнонных возбуждений. Действительно, в предыдущей главе было показано, что при возбуждении двухмагнонной моды существует оптимальная длительность возбуждающего импульса. Более того, несмотря то, что в Главе 2 были получены правила отбора, результат оказывается недостаточно обобщенными и требует полноценного перерасчета при любых изменениях системы. В данной главе представлен формализм, позволяющий описать возбуждение, динамику и детектирование двухмагнонной 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 будет введено определение псевдовектора спиновых корреляций и описаны его основные свойства. В разделе 3.2 представлено уравнение движения и гамильтониан, соответствующие псевдовектору спиновых корреляций. В разделе 3.3 рассматриваются процессы возбуждения и детектирования в рамках выбранного формализма. В разделе 3.4 показаны результаты разработанной теоретической модели в отношении экспериментальной работы по возбуждению двухмагнонной динамики в RbMnF_3 .

Результаты данной главы вошли в статью Coherent THz spin dynamics in antiferromagnets beyond the approximation of the Néel vector / F. Formisano [и др.] // APL Mater. — 2024. — Т. 12, № 1. — С. 011105..

3.1 Определение псевдовектора спиновых корреляций

Как можно заметить, введенные в главе 2 двухмагنونные операторы записывают в векторной форме, где каждому элементу сопоставляют проекцию некоего оператора–вектора. Однако физический смысл данного вектора остается скрыт за несколькими преобразованиями, носящими больше математический характер. Эта особенность может затруднять развитие интуитивного понимания возникающей динамики. Более того, описанный подход в решении задач о двухмагнонной моде оказывается сильно связан с выбранной кристаллической структурой, и требует заново выводить соотношения для спиновых корреляций при переходе к другой кристаллической решетке. Также стоит отметить, что несмотря на физическую простоту спиновых корреляций $\langle \hat{\mathbf{S}}(\mathbf{r}_i) \hat{\mathbf{S}}(\mathbf{r}_i + \boldsymbol{\delta}) \rangle$, использовать их для получения уравнения движения, как это делается с классическими магнитными параметрами порядка, оказывается невозможно. Действительно, переписав гейзенберговский гамильтониан (1.1) через $\hat{C}(\boldsymbol{\delta}) = 2 \sum_i \hat{\mathbf{S}}(\mathbf{r}_i) \hat{\mathbf{S}}(\mathbf{r}_i + \boldsymbol{\delta})$ – суммы спиновых корреляций вдоль ближайших соседей $\hat{H}_0 = J \sum_{\boldsymbol{\delta}} \hat{C}(\boldsymbol{\delta})$, можно заметить, что корреляции оказываются связаны между собой и выделить энергию одной из связей невозможно. Это согласуется с результатами главы 2, где было продемонстрировано, что при возбуждении спиновых корреляций вдоль одной из осей, возникают осцилляции и вдоль других соседей. Таким образом, возникает потребность во введении нового оператора, который будет связан с физическими свойствами системы, например диэлектрической проницаемостью, но при этом позволит записать уравнение движения.

Для решения поставленной задачи более детально рассмотрим минимально необходимы набор приближений. Ключевым приближением здесь, как и прежде, можно считать малость поперечных отклонений спиновой подсистемы от состояния равновесия. Это позволяет провести аналогию с математическим маятником, где в приближении малых углов можно произвести замену для смещений вдоль $\propto \mathbf{v}^2/2$ и поперек $\propto \mathbf{v}$ равновесного положения, где $\mathbf{v}$ – угол отклонения. С точки зрения оператора спина, можно получить выражения для проекций на равновесную ось (ось z) $\hat{S}_i^z = S - \hat{S}_i^- \hat{S}_i^+ / 2S$ и $\hat{S}_j^z = -S + \hat{S}_j^+ \hat{S}_j^- / 2S$. Такое представление позволяет корректно произвести переход в пространство волновых векторов, где уравнения становятся независимыми. Таким образом,

по аналогии с магنونным подходом, можно ввести набор операторов, отвечающий за состояние системы

$$\begin{aligned}\hat{C}_{\mathbf{k}}^X &= \frac{1}{2S} \left(\hat{S}_{\mathbf{k}}^x \hat{S}_{-\mathbf{k}}^x + \hat{S}_{\mathbf{k}}^y \hat{S}_{-\mathbf{k}}^y \right); \\ \hat{C}_{\mathbf{k}}^Y &= \frac{1}{2S} \left(\hat{S}_{\mathbf{k}}^x \hat{S}_{-\mathbf{k}}^y - \hat{S}_{\mathbf{k}}^y \hat{S}_{-\mathbf{k}}^x \right); \\ \hat{C}_{\mathbf{k}}^Z &= \frac{1}{2} \left(2S + 1 - \hat{S}_{\mathbf{k}}^z + \hat{S}_{-\mathbf{k}}^z \right),\end{aligned}\tag{3.1}$$

где $\mathbf{k}$ и $-\mathbf{k}$ соответствуют различным подрешеткам. Представленные операторы в линейном приближении образуют псевдовектор $\hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}$ с гиперболической метрикой $X^2 + Y^2 - Z^2 = -R^2$, который удовлетворяет векторному произведению $\hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}} \times \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}} = i\hbar \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}$. Учет нелинейных компонент от векторного произведения дает лишь малую по числу частиц поправку, которая имеет значение лишь при высоких температурах и может быть легко введена посредством перенормировки [32].

Рассматривая Ур. (3.1), можно отметить, что в равновесном состоянии $\langle \hat{C}_{\mathbf{k}}^Y \rangle = 0$. При этом динамика антиферромагнитного вектора оказывается связана с Z компонентой псевдовекторного оператора $\Delta L^Z \propto \sum_{\mathbf{k}} \langle \hat{C}_{\mathbf{k}}^{(3)} \rangle$. С другой стороны, $\langle \hat{C}_{\mathbf{k}}^X \rangle \neq 0$, что будет показано в следующем разделе и указывает на невозможность описывать двухмагнонные моды в классических параметрах магнитного порядка.

3.2 Уравнение движения

Как уже было указано в предыдущем разделе, псевдовектора $\hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}$ диагонализуют гамильтониан

$$\hat{H} = 2JS \sum_{\mathbf{k}, \delta} \left(\hat{C}_{\mathbf{k}}^Z + \cos(\mathbf{k} \cdot \delta) \hat{C}_{\mathbf{k}}^X \right)\tag{3.2}$$

Важно отметить, что по аналогии с магنونным подходом в псевдовекторной модели появляется "аномальное" слагаемое, которое отражает нетривиальность основного состояния антиферромагнетиков, не позволяя при нулевой температуре реализовать неелевское состояние.

Используя полученное выражение для гамильтониана и уравнение Гейзенберга, можно вывести уравнение движения для псевдовектора спиновых

корреляций

$$\hbar \frac{\partial \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}}{\partial t} - \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}} \times \left(-\frac{\partial \hat{H}}{\partial \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}} \right) = 0. \quad (3.3)$$

Очевидно, что полученная производная от гамильтониана по псевдовектору спиновых корреляций имеет смысл эффективного поля, ответственного за ориентацию $\hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}$ в гиперболическом пространстве спиновых корреляций [Рис. 3.1(а)]:

$$\mathbf{B}_{\mathbf{k}} = -\frac{\partial \hat{H}}{\partial \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}}. \quad (3.4)$$

Более того, оказывается возможно выразить эффективное поле для каждой отдельной связи между ближайшими магнитными ионами, образованной обменным взаимодействием

$$\mathbf{B}_{\mathbf{k}}(\boldsymbol{\delta}) = 2JS(-\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}), 0, 1), \quad (3.5)$$

где $\mathbf{B}_{\mathbf{k}} = \sum_{\boldsymbol{\delta}} \mathbf{B}_{\mathbf{k}}(\boldsymbol{\delta})$. Таким образом, можно учитывать обменное взаимодействие с соседями следующих порядков или структуры с различными величинами обменного взаимодействия вдоль различных кристаллографических осей. Можно также заметить, что сформулированное в данной работе определение псевдовектора спиновых корреляций позволяет интуитивным образом ввести магнитную анизотропию для случаев, когда характеризующий вектор магнитной анизотропии ориентирован вдоль выбранной оси квантования, через введение дополнительного вклада в эффективное поле. В соответствии с введенными обозначениями, гамильтониан принимает форму, аналогичную энергии намагниченности в магнитном поле

$$\hat{H}_{2M} = - \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{B}_{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}, \quad (3.6)$$

Полученное эффективное поле обменного взаимодействия, по аналогии с классическими задачами об эффективном поле, имеет длину, соответствующую частоте прецессии псевдовектора спиновых корреляций, хоть и выраженную в неевклидовой метрике. Как уже было отмечено, 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 двухмагнонной динамики, которые были получены Главе 2 только численно.

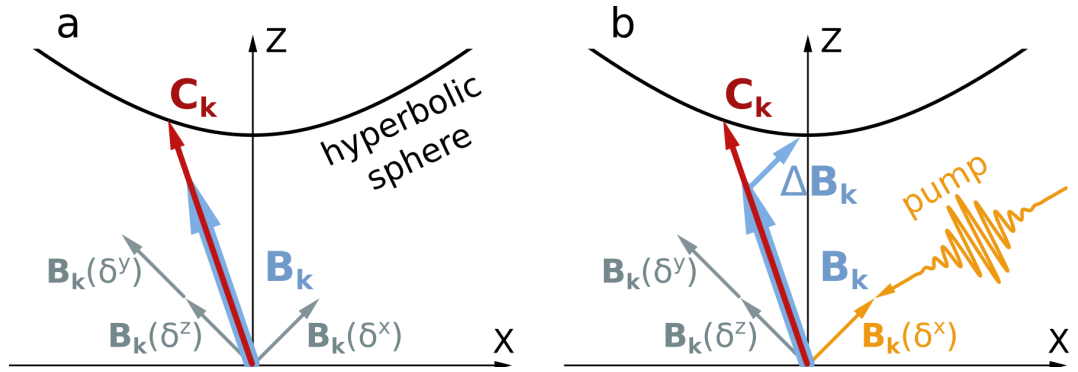


Рисунок 3.1 — (а) Псевдовектор спиновых корреляций и эффективное поле обменного взаимодействия для одного из волновых векторов. Аналогично намагниченности в ферромагнетиках, конец псевдовектора спиновых корреляций лежит на поверхности сферы. Эффективное поле обменного взаимодействия состоит из трех компонент, соответствующих связям ближайших магнитных ионов. (б) 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.

3.3 Возбуждение и детектирование динамики псевдовектора спиновых корреляций

Для случая экспериментальной установки из Главы 2 [Рис. 2.1], возмущение системы электрическим полем лазерного импульса можно представить с помощью сумм спиновых корреляций

$$\Delta\hat{H} = 2A(\omega) \sum_{i,\delta} (\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\delta})^2 \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta}, \quad (3.7)$$

где $A(\omega)\delta^x\delta^x \langle \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta^x} \rangle$ пропорциональна диэлектрической проницаемости на частоте ω с частотной зависимостью $A(\omega)$, определяемой обменным взаимодействием, шириной запрещенной зоны и кристаллической структурой.

Проведя преобразование, представленное в разделе 3.1, можно получить возмущение системы за счет лазерно-индуцированного изменения обменного взаимодействия, написанное через оператор псевдовектора спиновых корреля-

ций

$$\Delta \hat{H} = A(\omega) \sum_{\mathbf{k}, \delta} (\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\delta})^2 \left(\hat{C}_{\mathbf{k}}^Z + \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}) \hat{C}_{\mathbf{k}}^X \right), \quad (3.8)$$

которое можно также привести к виду скалярного произведения с неким отклонением эффективного поля [Рис. 3.1(б)].

$$\Delta \hat{H} = - \sum_{\mathbf{k}} \Delta \mathbf{B}_{\mathbf{k}} \cdot \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}; \quad (3.9)$$

$$\Delta \mathbf{B}_{\mathbf{k}} = A(\omega) \sum_{\delta} (\mathbf{E} \cdot \boldsymbol{\delta})^2 (-\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}), 0, 1). \quad (3.10)$$

Из Ур. (3.10) видно, что наибольшее значение возмущение эффективного поля обменного взаимодействия достигается при поляризации электрического поля лазерного импульса вдоль вектора к ближайшему соседу, что соответствует результатам полученным в главе 2. Таким образом лазерно-индуцированное возмущение обменного взаимодействия можно выразить через изменение вектора эффективного поля, что является прямым аналогом классических моделей для описания возбуждения спиновой динамики в ферромагнетиках. Действительно, выражая уравнение движения (3.3) через эффективные поля, можно получить уравнение, эквивалентное уравнению Ландау-Лифшица

$$\hbar \frac{\partial \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}}{\partial t} = \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}} \times (\mathbf{B}_{\mathbf{k}} + \Delta \mathbf{B}_{\mathbf{k}}). \quad (3.11)$$

Получающуюся на основе данного уравнения динамику можно представить как прецессию псевдовектора спиновых корреляций на поверхности гиперболической сферы [Рис. 3.1(b)].

Важно отметить, что получившееся уравнение является дифференциальным уравнением первого порядка, а значит не обладает инерцией. Таким образом, для возбуждения двухмагнетонной динамики существует оптимальная длительность возбуждающего импульса, что также соответствует полученному коэффициенту для амплитуды осцилляций спиновых корреляций [Ур. (2.16)], представленному в главе 2. Этот факт еще раз подчеркивает отличие двухмагнетонных мод от одномагнетонных, так как для одномагнетонных мод в антиферромагнетике уравнение движения обязано быть уравнением второго порядка и обладать инерцией [61]. Понимание данной особенности динамики спиновых корреляций при возбуждении двухмагнетонной моды позволяет определить

оптимальные параметры для создания экспериментов по методике накачки-зондирования.

Чтобы определить поляризационную зависимость детектирования необходимо рассмотреть изменение диэлектрической проницаемости, которая связана со спиновыми корреляциями (раздел 2.2). Их соотношение можно также выразить через в псевдовекторном представлении

$$\Delta \varepsilon^{\nu\nu}(\omega, \Delta t) \propto \sum_{\mathbf{k}, \delta} \Delta \left\langle \left(\hat{C}_{\mathbf{k}}^Z + \cos(\mathbf{k} \cdot \delta) \hat{C}_{\mathbf{k}}^X \right) (\Delta t) \right\rangle \delta^\nu \delta^\nu. \quad (3.12)$$

Это уравнение объясняет тот факт, что динамика спиновых корреляций дает только диагональные компоненты диэлектрического тензора, поскольку каждый магнитный ион в кубической системе имеет ближайших соседей вдоль кристаллографических осей.

Как и для обычного уравнения Ландау-Лифшица, зависимость динамики $\hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{k}}$ от поляризации накачки должна следовать из вызванного электрическим полем накачки возмущением эффективного поля $\mathbf{B}_{\mathbf{k}}^{\text{tot}} = \mathbf{B}_{\mathbf{k}} + \Delta \mathbf{B}_{\mathbf{k}}$. Рассмотрим сначала X -компоненту поля

$$B_{\mathbf{k}}^X = -\frac{B_{\mathbf{k}}^Z}{3} [\cos(\mathbf{k} \cdot \delta^x) + \cos(\mathbf{k} \cdot \delta^y) + \cos(\mathbf{k} \cdot \delta^z)]; \quad (3.13)$$

$$\begin{aligned} \Delta B_{\mathbf{k}}^X &= -\frac{\Delta B_{\mathbf{k}}^Z}{2} \cos(2\theta) [\cos(\mathbf{k} \cdot \delta^x) - \cos(\mathbf{k} \cdot \delta^y)] \\ &\quad - \frac{\Delta B_{\mathbf{k}}^Z}{2} [\cos(\mathbf{k} \cdot \delta^x) + \cos(\mathbf{k} \cdot \delta^y)], \end{aligned} \quad (3.14)$$

где δ^ν обозначает вектор до ближайшего соседа вдоль оси ν , $\text{tg}(\theta) = E^y/E^x$, при $E^z = 0$.

В более общем случае, как и при возмущении эффективных полей в ферромагнетиках, для возбуждения динамики требуется приложить дополнительное поле, имеющее ортогональную к равновесному полю компоненту. Амплитуда возбуждаемой динамики тогда пропорциональна $|\Delta \mathbf{B}_{\mathbf{k}}^\perp|$, где

$$\begin{aligned} \Delta \mathbf{B}_{\mathbf{k}}^\perp &= \frac{1}{|\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|^2} \mathbf{B}_{\mathbf{k}} \times (\mathbf{B}_{\mathbf{k}} \times \Delta \mathbf{B}_{\mathbf{k}}) \\ &= \frac{B_{\mathbf{k}}^X \Delta B_{\mathbf{k}}^Z - B_{\mathbf{k}}^Z \Delta B_{\mathbf{k}}^X}{|\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|^2} (B_{\mathbf{k}}^Z, 0, B_{\mathbf{k}}^X). \end{aligned} \quad (3.15)$$

Определив эффективное поле и его отклонение, ответственное за возбуждение динамики $\hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{k}}$, мы можем записать решение линеаризованного уравнения

движения [Ур. (3.11)] по аналогии с уравнением Ландау-Лифшица для намагниченности как

$$\Delta \langle \hat{C}_{\mathbf{k}}^X \rangle \propto |\Delta \mathbf{B}_{\mathbf{k}}^\perp| \sin \left(\frac{|\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|}{\hbar} t \right). \quad (3.16)$$

Затем, используя уравнение (3.12), можно получить выражение, которое связывает лазерно-индуцированное изменение эффективного поля и амплитуду индуцированного оптического двулучепреломления:

$$\begin{aligned} \varepsilon^{xx} - \varepsilon^{yy} &\propto \sum_{\mathbf{k}} \Delta \langle \hat{C}_{\mathbf{k}}^X \rangle [\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^x) - \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^y)] \\ &\propto \sum_{\mathbf{k}} |\Delta \mathbf{B}_{\mathbf{k}}^\perp| [\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^x) - \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^y)] \\ &= \sum_{\mathbf{k}} \frac{\Delta B_{\mathbf{k}}^Z}{6|\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|} \{3 \cos(2\theta) [\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^x) - \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^y)] \\ &\quad + \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^x) + \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^y) - 2 \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^z)\} [\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^x) - \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^y)] \\ &= \sum_{\mathbf{k}} \frac{\Delta B_{\mathbf{k}}^Z}{2|\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|} \cos(2\theta) [\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^x) - \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^y)]^2 \\ &\quad + \sum_{\mathbf{k}} \frac{\Delta B_{\mathbf{k}}^Z}{6|\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|} [\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^x) + \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^y) - 2 \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^z)] \\ &\quad \cdot [\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^x) - \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^y)]. \end{aligned} \quad (3.17)$$

Здесь для простоты была опущена часть, зависящая от времени. Второе слагаемое исчезает при суммировании по всей зоне Бриллюэна, поскольку $\Delta B_{\mathbf{k}}^Z$ не зависит от $\mathbf{k}$ и $|\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|$ четно по волновому вектору $\mathbf{k}$. Окончательное выражение для оптического двулучепреломления принимает вид:

$$(\varepsilon^{xx} - \varepsilon^{yy})(t) \propto \cos(2\theta) \sum_{\mathbf{k}} \frac{[\cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^x) - \cos(\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\delta}^y)]^2}{2|\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|} \sin \left(\frac{|\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|}{\hbar} t \right) \quad (3.18)$$

Таким образом, была получена $\cos(2\theta)$ -зависимость лазерно-индуцированной динамики оптического двулучепреломления непосредственно из уравнений движения для псевдовектора спиновых корреляций в соответствии с результатами магнетонной модели.

Далее, используя симметричный анализ, псевдовектор спиновых корреляций и стандартный формализм матриц Джонса [Ур. (2.24)], можно получить аналитическое выражение для амплитуды модуляции эллиптичности пробирующего лазерного импульса в зависимости от угла его изначальной поляризации

φ :

$$\Delta\varphi' = \frac{\omega d [\varepsilon^{xx} - \varepsilon^{yy}]}{4c\sqrt{\varepsilon^{xx}}} \sin(2\varphi) \propto \cos(2\theta) \sin(2\varphi), \quad (3.19)$$

которое находится в полном соответствии с численными расчетами из главы 2.

Феноменологически эту поляризационную зависимость можно понять следующим образом. Из уравнения (3.7) видно, что неравенство $E^\nu \neq 0$ дает $\partial \langle \Delta \hat{H} \rangle / \partial \langle \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_{i+\delta^\nu} \rangle \neq 0$. Это означает, что накачка антиферромагнетика лазерным импульсом, поляризованным вдоль одной из главных кристаллографических осей, выводит систему из термодинамического равновесия и приводит к возбуждению осцилляций спиновых корреляций. Такие изменения спиновых корреляционных функций вносят вклад в диэлектрическую проницаемость как $\Delta\varepsilon^{\mu\nu} = \partial^2 \langle \Delta \hat{H} \rangle / \partial E^\nu \partial E^\mu$, что может привести к индуцированной накачкой анизотропии $\varepsilon^{xx} - \varepsilon^{yy} \neq 0$ в изначально оптически изотропной кубической системе. Для точечной группы $m\bar{3}m$ можно определить, что вызванное накачкой изменение диэлектрической проницаемости $\varepsilon^{xx} - \varepsilon^{yy} = 2gE^2 \cos 2\theta$, где $g = \xi^{xxxx} - \xi^{yyxx}$, а ξ — феноменологический полярный тензор [62]. В области малого поглощения такое изменение диэлектрической проницаемости под воздействием накачки приводит к наблюдаемой в эксперименте (раздел 3.4) эллиптичности зондирующего импульса, которая подчиняется $\sin 2\varphi$ зависимости от его поляризации [Рис. 3.2(d)].

3.4 Сравнение с экспериментальными данными

Как уже было отмечено в разделе 2.3, KNiF_3 является одним из наиболее тщательно изученных материалов с точки зрения возбуждения и детектирования двухмагنونной моды фемтосекундными лазерными импульсами. Ф. Формизано, Т. Т. Гареевым, Д. И. Хусяиновым, Д. Афанасьевым, Р. М. Дубровиным и А. В. Кимелем был проведен эксперимент по возбуждению двухмагنونной моды методом накачка-зондирование в кубическом гейзенберговском антиферромагнетике RbMnF_3 . Данный материал обладает схожими с KNiF_3 параметрами, однако ориентация антиферромагнитного вектора отличается и направлена вдоль главной диагонали куба у RbMnF_3 , в то время как у

KNiF_3 антиферромагнитный вектор лежит вдоль одной из кристаллографических осей. Данная особенность вызвана наличием крайне слабой магнитной анизотропией, которой можно пренебречь при расчете двухмагнонной моды [раздел 2.2.2].

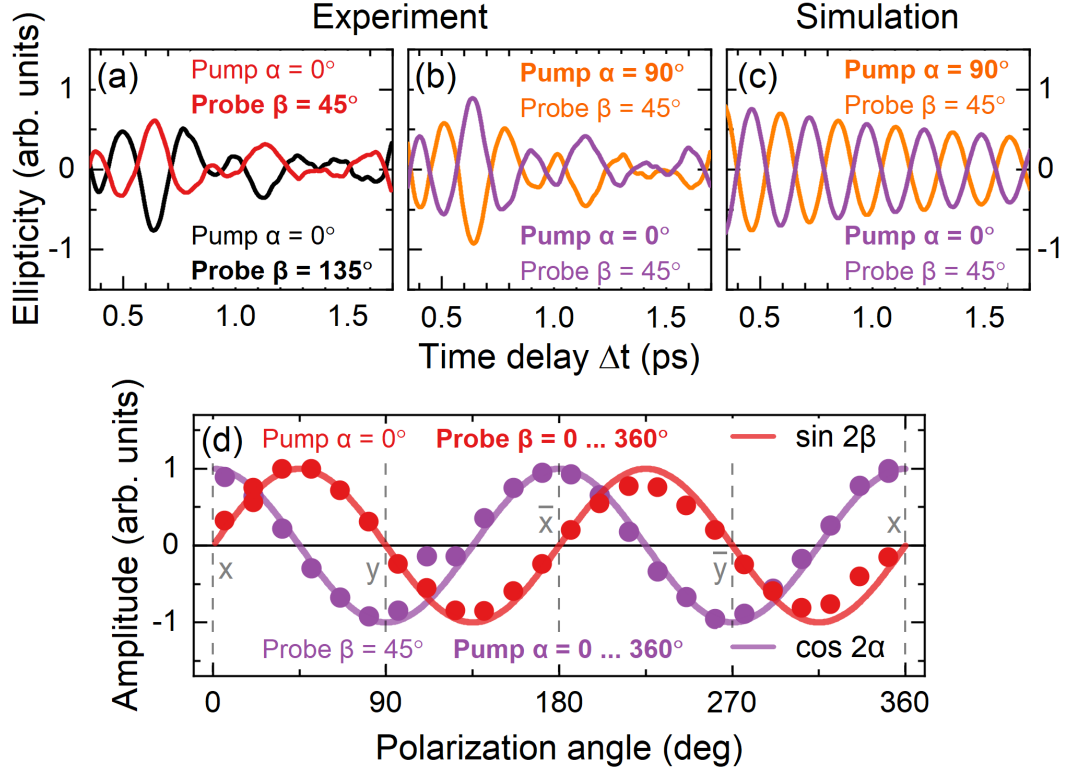


Рисунок 3.2 — (a,b) Экспериментальная и (c) расчетная эллиптичность пробирующего импульса при возбуждении и детектировании при (a) фиксированной поляризации накачки $\alpha = 0$ и поляризации пробирующего импульса $\beta = 45, 135^\circ$, (b,c) фиксированной поляризации пробирования $\beta = 45^\circ$ и поляризации накачки $\alpha = 0, 90^\circ$. (г) Знакозависимая амплитуда Фурье 4 ТГц колебаний в зависимости от угла поляризации накачки α при угле поляризации пробирования $\beta = 45^\circ$ (фиолетовые символы) и угла поляризации пробирования β при угле поляризации накачки $\alpha = 0^\circ$ (красные символы). Смена знака соответствует сдвигу фазы сигнала на π . Фиолетовые и красные линии показывают аппроксимацию экспериментальных данных функциями $\cos 2\alpha$ и $\sin 2\beta$ соответственно. Экспериментальные данные получены при $T = 5$ К.

Чтобы понять наблюдаемую в данном эксперименте спиновую динамику, авторами были проведены измерения индуцированной накачкой эллиптичности при различных углах поляризации накачки θ и пробирующего импульса φ при $T = 5$ К [Рис. 3.2]. Наиболее выраженные колебания эллиптичности

пробирующего импульса наблюдались при поляризации накачки вдоль кристаллографических осей x и y ($\theta = 0, 90^\circ$) и поляризации зонда под углом $\varphi = 45^\circ, 135^\circ$. Более того, хорошо видно, что фаза колебаний смещается на π при повороте поляризации накачки или зонда на 90° [Рис. 3.2(a,b)]. Чтобы получить дополнительную информацию, были проведены две серии экспериментов для фиксированной поляризации накачки ($\theta = 0^\circ$) и вращающейся поляризации пробирующего импульса ($\varphi = 0^\circ \dots 360^\circ$), а также для фиксированной поляризации пробирующего импульса ($\varphi = 45^\circ$) и вращающейся накачки ($\theta = 0^\circ \dots 360^\circ$). Вариации амплитуд Фурье полученных таким образом сигналов достаточно хорошо описываются $\cos 2\theta$ и $\sin 2\varphi$ [Рис. 3.2(d)], что полностью соответствует предсказаниям псевдовекторной модели.

Используя полученные выше выражения, была рассчитана эллиптичность $\Delta\varphi'(t)$ [Рис. 3.2(c)]. В расчетах использовались следующие параметры RbMnF_3 : $J = 0,52$ мэВ, $S = 5/2$, $z = 6$, $\tau_p = 45$ фс [63]. Лазерно-индуцированное возмущение обменного взаимодействия составило -1% , что, как было показано выше, является реалистичной величиной. В расчетах, угол поляризации падающего пробирующего импульса составлял $\varphi = 45, 135^\circ$, а угол поляризации накачки $\theta = 0, 90^\circ$. Важно отметим, что данная модель не учитывает магнон-магнонные взаимодействия, которые смещают максимум спектральной амплитуды в область более низких частот. Таким образом, J , использованная в расчетах, находится на нижнем пределе диапазона значений, указанных в литературе [63]. Расчеты дают колебания эллиптичности пробирующего импульса на доминирующей частоте 4 ТГц, что хорошо согласуется с экспериментальным результатом. Осцилляции, индуцированные импульсами накачки с ортогональными поляризациями, имеют противоположную начальную фазу, что также видно в экспериментах [Рис. 3.2(a,c)]. Вращение поляризации пробирующего импульса от $\varphi = 45^\circ$ до 135° приводит к изменению фазы на π в соответствии с экспериментами [Рис. 3.2(b)].

Кроме того, модель правильно описывает наблюдаемую в эксперименте линейную зависимость эффекта от интенсивности импульса накачки, поскольку возмущение эффективного поля в уравнении (3.11) квадратично по электрическому полю импульса накачки E^ν [Ур. (3.10)]. Это контрастирует с макроспиновым приближением. Действительно, частоты спиновых волн Ω_k намного меньше частот фотонов накачки ω , а возбуждение спиновых волн включает нелинейный процесс передачи энергии $\omega_1 - \omega_2 = 2\Omega_k$. Следовательно,

в первом порядке лазерно-индуцированный момент, действующий на $\mathbf{M}$ или $\mathbf{L}$, и амплитуда возбужденной спиновой волны квадратичны по отношению к E^ν [61; 64]. Поскольку волновые векторы спиновых волн $k \approx \pi/a$ намного больше волнового вектора света $q \approx 0$, их можно обнаружить только парами, такими что $\mathbf{k} - \mathbf{k} = \mathbf{q} \approx 0$. Следовательно, сигнал, обнаруженный зондирующим импульсом, может возникать только из произведения амплитуд спиновых волн. В итоге, регистрируемый сигнал должен быть квадратичным по отношению к интенсивности накачки. Еще одной особенностью полученных результатов, является отсутствие зависимости от ориентации антиферромагнитного вектора. Действительно, как для KNiF_3 [40], так для RbMnF_3 поляризационные зависимости совпали несмотря на различные ориентации $\mathbf{L}$.

3.5 Основные выводы к Главе 3

В данной главе был представлен формализм псевдовектора спиновых корреляций, описывающий двухмагнонную моду как отклонение псевдовектора от положения равновесия. Показано, что положение равновесия определяется эффективным полем обменного взаимодействия, которое зависит от константы обменного взаимодействия и ориентации ближайших соседей. Рассматриваемый подход позволяет записать энергию магнитной системы как скалярное произведение псевдовектора спиновых корреляций и эффективного поля в гиперболическом пространстве. Используя такую запись можно простым образом получить уравнение движения для спиновых корреляций и описать динамику двухмагнонной моды. Вопреки стандартным представлениям о магнитной динамике в антиферромагнетиках, уравнение движения для псевдовектора оказалось уравнением первого порядка, что указывает на отсутствие инерции и объясняет наличие оптимальной длительности возбуждения, обнаруженной в главе 2.

В рамках представленного формализма было описано лазерно-индуцированное изменение обменного взаимодействия как возникновение дополнительного лазерно-индуцированного эффективного поля. Показано, что при наличии у данного поля ненулевой ортогональной к равновесному полю компоненты возможно возбудить спиновую динамику на частоте, соответствующей равновес-

ному полю двухмагنونной моды. При это величина лазерно-индуцированного эффективного поля зависит от проекции электрического поля возбуждающего импульса на одну из осей, образованных векторами к ближайшим соседям. Полученный результат позволяет аналитически вывести поляризационную зависимость для возбуждения двухмагنونной моды и соответствующему ей индуцированному двулучепреломлению.

Результаты полученной модели применены для экспериментов по возбуждению и детектированию двухмагنونной моды фемтосекундными лазерными импульсами в RbMnF_3 . В отличие от моделей использующих $\mathbf{M}$ и $\mathbf{L}$, формализм псевдовектора спиновых корреляций способен адекватно описывать реакцию на анизотропное возмущение обменной связи спиновой системы поляризованным лазерным импульсом, а также выявляет влияние последнего на оптические свойства среды. Важным результатом разработанной модели является интуитивно понятная аналитическая формула для зависящей от времени спиновой динамики, а также поляризационных зависимостей оптических сигналов в экспериментах накачки-зондирования, отсутствующая в ранее опубликованных работах, выходящих за рамки теории макроспинового приближения [37; 40].

Глава 4. Спектры двухмагнонных мод при спонтанном и импульсном вынужденном комбинационном рассеянии света

Глава посвящена сравнительному анализу спектров двухмагнонных мод, получаемых в экспериментах по КРС и ИВКРС. Работы по возбуждению двухмагнонных модам за счет возмущения обменного взаимодействия в экспериментах по вынужденному комбинационному рассеянию, поставили вопрос о согласованности результатов измерений, полученных в экспериментах КРС и ИВКРС. 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 двухмагнонными спектрами. В качестве материала рассмотрены кубические антиферромагнетики, такие как KNiF_3 и RbMnF_3 , чья первая магнитная зона Бриллюэна изображена на рисунке 4.1(а). 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. Будет показано, что для континуума мод чувствительность к фазе приводит к относительному сдвигу основных пиков в двух спектрах, а спектр ИВКРС значительно расширяется и простирается в диапазон выше максимальной частоты двухмагнонной моды.

В разделе 4.1 представлено расширение формализма псевдовекторов спиновых корреляций для дальнейшего сравнения экспериментов по КРС и ИВКРС. В разделе 4.2 показаны спектры двухмагнонных мод для конфигураций КРС и ИВКРС. В разделе 4.3 проведен анализ полученных спектров и их сравнение с экспериментальными данными, представленными в литературе.

Результаты данной главы вошли в статью 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. — Т. 110, № 17. — С. 174439.

4.1 Расширение формализма псевдовекторов спиновых корреляций на случай спектроскопии комбинационного рассеяния света

В данном разделе рассмотрены дополнения к теоретической модели, представленной в главе 2, которые позволят рассмотреть процессы рамановского рассеяния света в рамках псевдовекторного формализма спиновых корреляций. В частности, описаны повороты системы координат, диагонализующие гамильтониан, выведены диэлектрические восприимчивости и рамановский тензор для псевдовекторов спиновых корреляций, а также приведены соответствующие функции Грина.

4.1.1 Ориентация эффективного поля обменного взаимодействия в гиперболической системе координат

В разделе "Уравнение движения" (3.2) был введен гамильтониан спиновой системы (3.6) через псевдовектор спиновых корреляций и эффективных полей. Однако, ориентация эффективных полей, в общем случае, не соответствует изначально выбранным осям ($\mathbf{B}_k \nparallel Z$). В результате, энергия двухмаглонной моды с определенным волновым вектором $\mathbf{k}$ оказывается пропорциональна линейной комбинации сразу двух проекций спиновых корреляций $\langle \mathbf{C}_k^X \rangle$ и $\langle \mathbf{C}_k^Z \rangle$. С другой стороны, по аналогии с ферромагнитными системами, для каждой двухмаглонной моды можно ввести такую систему координат, в которой эффективное поле окажется ориентированно вдоль оси Z . Для этого необходимо применить дополнительное преобразование, которое можно понимать как зависящее от $\mathbf{k}$ вращение системы в гиперболическом пространстве [Рис. 4.1(b,c)]:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{K}}_k &= R_k \hat{\mathbf{C}}_k; \quad \mathbf{F}_k = R_k \mathbf{B}_k; \\ R_k &= \frac{1}{|\mathbf{B}_k|} \begin{pmatrix} B_k^Z & 0 & -B_k^X \\ 0 & |\mathbf{B}_k| & 0 \\ -B_k^X & 0 & B_k^Z \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (4.1)$$

Это вращение диагонализует гамильтониан $\hat{H}_{2M} = \sum_{\mathbf{k}} F_{\mathbf{k}}^Z \hat{K}_{\mathbf{k}}^Z$, сохраняя при этом длину эффективного поля, $|\mathbf{F}_{\mathbf{k}}| = |\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|$. В основном состоянии, ожидаемое значение $\langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^Z \rangle$ постоянно и отлично от нуля, тогда как $\langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^X \rangle$ и $\langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^Y \rangle$ равны нулю. Важно отметить, что операторы $\hat{K}_{\mathbf{k}}$, представленные здесь, оказываются аналогичны операторам, представленным в главе 2, которые были введены на основе преобразования Гольштейна-Примакова. Данный факт подчеркивает непротиворечивость представленного формализма.

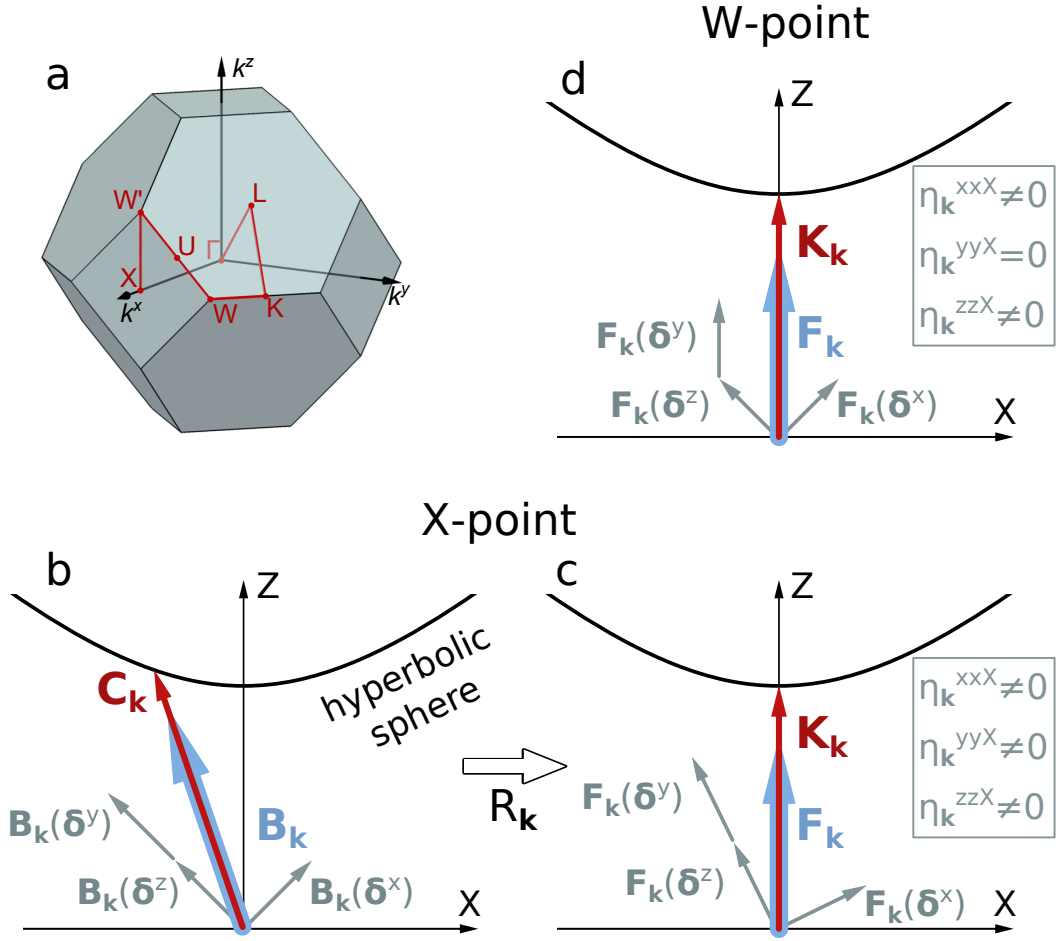


Рисунок 4.1 — (a) Магнитная зона Бриллюэна гранецентрированного кубического антиферромагнетика с траекторией через ключевые точки зоны. (b) Гиперболическая сфера, математическое ожидание псевдовектора $\langle \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}} \rangle$ и эффективное поле $\mathbf{B}_{\mathbf{k}}$ в основном состоянии. Показаны компоненты $\mathbf{B}_{\mathbf{k}}$, создаваемые ближайшими соседями. Волновой вектор $\mathbf{k}$ выбран в точке X. (c) Вращение $R_{\mathbf{k}}$ осей, которое преобразует $\hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}$ в $\hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}$ и ориентирует $\mathbf{B}_{\mathbf{k}}$ вдоль оси Z. (d) Эффективные обменные поля и $\langle \hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}} \rangle$ для точки W. В отличие от точки X, $\mathbf{F}_{\mathbf{k}}(\delta^y)$ ориентирован вдоль оси Z, что приводит к нулевой связи со светом, поляризованным вдоль оси y для этой точки $\mathbf{k}$.

4.1.2 Диэлектрическая восприимчивость и рамановский тензор для двухмагнанных мод

Для описания сечения рассеяния в КРС или поляризационной модуляции пробирующего импульса в ИВКРС-экспериментах в формализме псевдовекторов спиновых корреляций необходимо ввести зависимость диэлектрической восприимчивости от соответствующих компонент $\hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}$ или $\hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}$. В терминах псевдовектора $\hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}$ ($\hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}$) и эффективного поля $\mathbf{B}_{\mathbf{k}}$ ($\mathbf{F}_{\mathbf{k}}$) диэлектрическая проницаемость кубического антиферромагнетика приобретает дополнительный диагональный вклад из-за магнитного упорядочения

$$\begin{aligned}\hat{\chi}^{\nu\nu}(\omega) &= -2 \sum_{\mathbf{k}, \delta} \frac{\mathbf{B}_{\mathbf{k}}(\delta) \cdot \hat{\mathbf{C}}_{\mathbf{k}}}{U^2 - \hbar^2 \omega^2} \frac{Q^2 \delta^\nu \delta^\nu}{\epsilon_0 a^3} \\ &= -2 \sum_{\mathbf{k}, \delta} \frac{\mathbf{F}_{\mathbf{k}}(\delta) \cdot \hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}}{U^2 - \hbar^2 \omega^2} \frac{Q^2 \delta^\nu \delta^\nu}{\epsilon_0 a^3},\end{aligned}\quad (4.2)$$

где $\nu = x, y, z$, U — ширина энергетической щели диэлектрика, Q — эффективный заряд в модели Хаббарда [18]. Хотя они и выведены для однозонной модели Хаббарда, аналогичные выражения можно получить непосредственно из анализа симметрии [65]. Выражение (4.2) можно переписать следующим образом:

$$\hat{\chi}^{\nu\nu}(\omega) = \sum_{\mathbf{k}, \Upsilon} \eta_{\mathbf{k}}^{\nu\nu\Upsilon}(\omega) \hat{K}_{\mathbf{k}}^{\Upsilon}, \quad (4.3)$$

$$\eta_{\mathbf{k}}^{\nu\nu\Upsilon}(\omega) = -2 \sum_{\delta} \frac{F_{\mathbf{k}}^{\Upsilon}(\delta)}{U^2 - \hbar^2 \omega^2} \frac{Q^2 \delta^\nu \delta^\nu}{\epsilon_0 a^3}, \quad (4.4)$$

где $\eta_{\mathbf{k}}^{\nu\nu\Upsilon}(\omega)$ имеет смысл тензора двухмагнонной восприимчивости для заданной $\mathbf{k}$ -точки в магнитной зоне Бриллюэна. Первые два индекса ν определяют компоненты диэлектрической проницаемости в реальном пространстве, а третий индекс Υ соответствует проекции псевдовектора $\hat{\mathbf{K}}$ в двухмагнонном гиперболическом пространстве. Как легко видеть, в основном состоянии магнитное упорядочение вызывает только изотропный статический вклад в $\langle \hat{\chi}^{\nu\nu} \rangle = \sum_{\mathbf{k}} \eta^{\nu\nu Z} \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^Z \rangle$, называемый, в случае кубической системы, изотропной магнитной рефракцией [51]. Для описания КРС и ИВКРС интерес представляют анизотропные вклады в $\langle \hat{\chi}^{\nu\nu} \rangle$, связанные с динамикой $\langle \hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}} \rangle$. Стоит отметить, что полученные в данном разделе восприимчивости напрямую связаны с восприимчивостями [Ур. (1.17)], представленными в разделе 1.3.

4.1.3 Функция Грина для псевдовектора спиновых корреляций

Динамику $\hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}$ можно получить путем решения уравнения движения для двухмагнонной моды, как описано в главе 3 и в [66]. Однако, для проведения сравнительного анализа сигналов КРС и ИВКРС, удобнее использовать метод функции Грина. Выражение для функции Грина от $\hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}$ получается на основе уравнения движения для двухвременных функций Грина и диагонализированного гамильтониана для двухмагнонной моды:

$$G(\hat{K}_{\mathbf{k}}^X, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X | \omega') = -\frac{\hbar}{\sqrt{2\pi}} \frac{|\mathbf{F}_{\mathbf{k}}| \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^Z \rangle}{\hbar^2(\omega' - i\varepsilon)^2 - |\mathbf{F}_{\mathbf{k}}|^2}. \quad (4.5)$$

Эти функции Грина имеют резонансы на частотах двухмагнонных мод $\omega' = 2\Omega_{\mathbf{k}} = |\mathbf{B}_{\mathbf{k}}|/\hbar$ и соответствуют функциям полученным в 2.1.3 [Ур. (2.14)]. ε — феноменологический параметр затухания, введенный для учета конечных ширин и амплитуд этих резонансов. Здесь и далее в тексте рассматривается только функция Грина от $\hat{K}_{\mathbf{k}}^X$, поскольку $\hat{K}_{\mathbf{k}}^Z$ коммутирует с невозмущенным гамильтонианом и не осциллирует в результате лазерно-индуцированного возмущения. Динамику $\hat{K}_{\mathbf{k}}^Y$ можно опустить из дальнейшего анализа, поскольку $F_{\mathbf{k}}^Y(\delta^v) = 0$ и соответствующая компонента тензора восприимчивости равна $\eta_{\mathbf{k}}^{vvY} = 0$ [Ур. ((3.5) и (4.4))]. Соответственно, $\eta_{\mathbf{k}}^{vvX}$ имеет смысл рамановского тензора, тогда как $\hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}$ — нормальная координата [66].

Важно отметить, что приведенные функции Грина записаны в простейшем приближении невзаимодействующих мод, то есть отсутствии магнон-магнонного взаимодействия. Данное приближение хорошо работает в случае большого значения спина у магнитного иона, но и для случая малого спина можно получить качественно верные результаты. Включение магнон-магнонного рассеяния приводит к перенормировке функций Грина, но не меняет их свойства и то, как они входят в выражениях для наблюдаемых.

4.2 Спектры комбинационного рассеяния света на двухмагнотной моде

4.2.1 Спонтанное комбинационное рассеяние света

Согласно [67], сечение комбинационного рассеяния определяется средним произведением двух диэлектрических восприимчивостей на частотах падающего и рассеянного света [Рис. 4.2]:

$$\begin{aligned}\sigma(\omega') &\propto e_I^\alpha e_I^\beta e_S^\mu e_S^\nu \langle \chi^{\alpha\mu} \chi^{\beta\nu} \rangle, \\ &\propto \sum_{\mathbf{k}, \Lambda, \Upsilon} \eta_{\mathbf{k}}^{\alpha\alpha\Lambda}(\omega_I) \eta_{\mathbf{k}}^{\beta\beta\Upsilon}(\omega_S) \Delta \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Lambda \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Upsilon(\omega') \rangle\end{aligned}\quad (4.6)$$

где $\omega' = \omega_I - \omega_S$, $\Delta \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Lambda \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Upsilon(\omega') \rangle$ - отклонение $\langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Lambda \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Upsilon(\omega') \rangle$ от равновесия, а также рассмотрена $\hat{\eta}_{\mathbf{k}}$ для кубической системы.

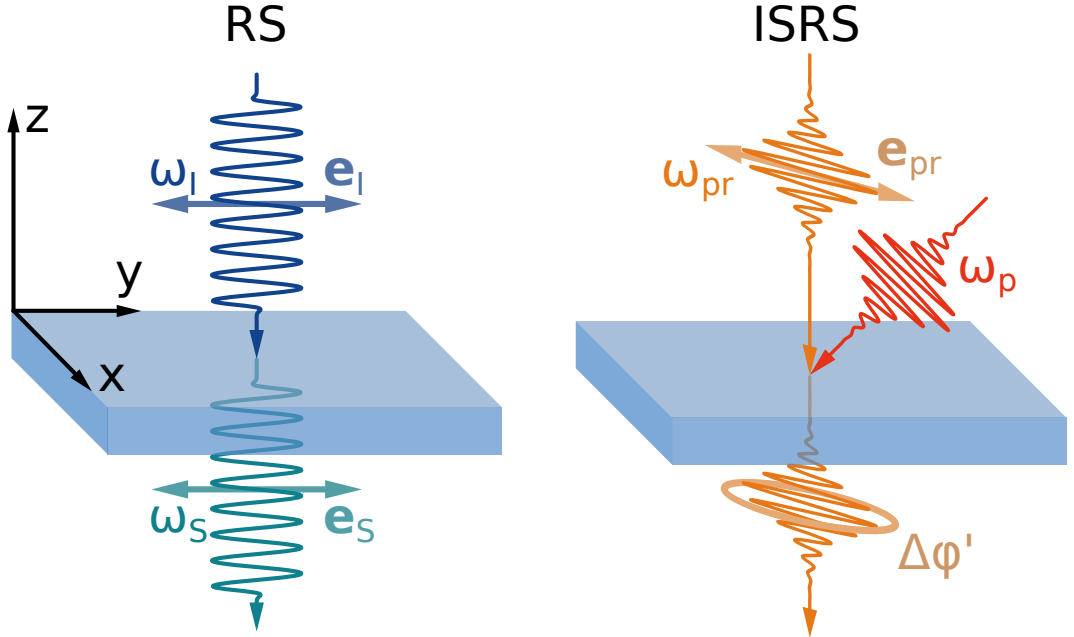


Рисунок 4.2 — Схематическое представление экспериментов по спонтанному (слева) и импульсному вынужденному комбинационному рассеянию света (справа).

Используя флуктуационно-диссипационную теорему, можно связать математическое ожидание $\Delta \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Lambda \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Upsilon(\omega') \rangle$ с функцией Грина $G(\hat{K}_{\mathbf{k}}^\Lambda, \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Upsilon | \omega')$: $\Delta \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Lambda \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Upsilon(\omega') \rangle = 2\hbar[1 + n_{BE}(\omega')]\text{Im} \left(G(\hat{K}_{\mathbf{k}}^\Lambda, \hat{K}_{\mathbf{k}}^\Upsilon | \omega') \right)$, где $n_{BE}(\omega')$ — распределение Бозе-Эйнштейна. Как было показано выше, в случае КРС необходимо

рассматривать только вклады, связанные с $\hat{K}_k^X$. В таком случае сечение КРС:

$$\sigma(\omega') \propto \text{Im} \sum_{\mathbf{k}} \eta_{\mathbf{k}}^{\alpha\alpha X}(\omega_I) \eta_{\mathbf{k}}^{\beta\beta X}(\omega_S) G(\hat{K}_{\mathbf{k}}^X, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X | \omega'). \quad (4.7)$$

Таким образом, получено выражение для спектра сечения КРС двухмагнонной моды как функции псевдовекторов $\hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}$. Далее в тексте будет предположено, что $\eta^{\nu\nu X}$ одинакова на ω_I и ω_S , поскольку можно пренебречь дисперсией диэлектрической проницаемости, когда обе частоты значительно ниже края поглощения, и $|\omega_I - \omega_S| \ll \omega_I$. Важно отметить, что множители $\eta_{\mathbf{k}}^{\alpha\alpha X} \eta_{\mathbf{k}}^{\beta\beta X}$ в уравнении (4.7) имеют смысл зависящих от волнового вектора весовых коэффициентов [12], т. е. они показывают, насколько значителен вклад в сигнал рассеяния от конкретной точки в зоне Бриллюэна. В отличие от [12; 32] и других последующих работ по КРС на двухмагнонных модах, в представленном формализме весовые коэффициенты отделены от функций Грина. Это позволяет раздельно анализировать взаимодействие света с материей и динамику спиновой подсистемы.

4.2.2 Импульсное вынужденное комбинационное рассеяние света

В случае ИВКРС интерес представляет спектр когерентной двухмагнонной моды, который получается из эллиптичности проходящего пробирующего импульса, измеренной во временной области. Для пробирующего импульса, распространяющегося вдоль оси z и поляризованного под углом φ относительно оси x [Рис. 4.2], соответствующее выражение имеет вид, аналогичный уравнению (2.25) и выражается через диэлектрическую восприимчивость $\langle \chi^{\nu\nu}(t) \rangle$. Дисперсия $\hat{\chi}$ в пределах спектральной ширины пробирующего импульса не учитывается. Возбуждаемая лазерным импульсом накачки динамика $\hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}$ вносит вклад в модуляцию диэлектрической проницаемости как

$$\Delta \langle \chi^{\nu\nu}(t) \rangle = \sum_{\mathbf{k}} \eta_{\mathbf{k}}^{\nu\nu X}(\omega_{pr}) \Delta \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^X(t) \rangle. \quad (4.8)$$

Когерентные двухмагнонные моды вызываются возмущением обменного взаимодействия [20], как следует из зависимости диэлектрической восприимчивости от спиновых корреляций [Ур. (4.2)]. Возмущение гамильтониана,

вызванное воздействием лазерного импульса, имеет вид

$$\Delta \hat{H}_{2M} = \frac{a^3 \varepsilon_0}{4} f(t) \sum_{\mathbf{v} \Upsilon \mathbf{k}} \eta_{\mathbf{k}}^{\mathbf{v} \Upsilon}(\omega_p) E^{\mathbf{v}} E^{\Upsilon} \hat{K}_{\mathbf{k}}^{\Upsilon}, \quad (4.9)$$

где $f(t)$ — огибающая импульса накачки во временной области. Такое возмущение можно выразить как дополнительный член к эффективному полю в повернутой системе координат $\Delta F_{\mathbf{k}}^{\Upsilon}(t) \propto f(t) \sum_{\mathbf{v}} \eta_{\mathbf{k}}^{\mathbf{v} \Upsilon}(\omega_p) E^{\mathbf{v}} E^{\Upsilon}$. Если $\Delta \mathbf{F}_{\mathbf{k}}$ не коллинеарна равновесному $\mathbf{F}_{\mathbf{k}}$, то возникает прецессия псевдовектора $\hat{\mathbf{K}}$ [Рис. 4.1(d)]. Поскольку $\mathbf{F}_{\mathbf{k}}$ выбрано ориентированным вдоль оси Z , условие возбуждения спиновой динамики сводится к требованию наличия ненулевой компоненты поля вдоль оси X

$$\Delta F_{\mathbf{k}}^X(t) \propto f(t) \sum_{\delta} (\mathbf{E} \cdot \delta)^2 F_{\mathbf{k}}^X(\delta). \quad (4.10)$$

Как легко видеть из уравнения (4.10), максимальная амплитуда возмущения достигается при поляризации накачки вдоль одной из осей кристалла, что соответствует правилам отбора, рассмотренным в Главе 2 и полученным в аналитическом виде в Главе 3.

Поскольку динамика $\hat{K}_{\mathbf{k}}^X$ задается сверткой функции Грина с огибающей импульса накачки во временной области, в частотной области получаем произведение функции Грина [Ур. (4.5)] и спектрального профиля импульса накачки $f(\omega')$:

$$\Delta \langle \hat{K}_{\mathbf{k}}^X(\omega') \rangle = \frac{a^3 \varepsilon_0}{4} f(\omega') G(\hat{K}_{\mathbf{k}}^X, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X | \omega') \sum_{\mathbf{v}} \eta_{\mathbf{k}}^{\mathbf{v} X}(\omega_p) E^{\mathbf{v}} E^{\Upsilon}. \quad (4.11)$$

Примечательно, что это выражение содержит как действительную, так и мнимую часть функции Грина от $\hat{\mathbf{K}}_{\mathbf{k}}$. Действительно, взаимодействие света с материей рассматривается в недиссипативном режиме, но последующая магнитная динамика содержит как когерентную часть, так и затухание.

В таком случае спектр эллиптичности пробирующего импульса получается, как абсолютное значение Фурье отображения $\varphi'(t)$:

$$\Delta \varphi'(\omega') = \frac{a^3 \varepsilon_0 \omega_{pr} d \sin(2\varphi)}{8c\sqrt{\varepsilon^0}} E^{\mathbf{v}} E^{\Upsilon} f(\omega') \times \left| \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{v}} [\eta_{\mathbf{k}}^{xxX}(\omega_{pr}) - \eta_{\mathbf{k}}^{yyX}(\omega_{pr})] \eta_{\mathbf{k}}^{\mathbf{v} X}(\omega_p) G(\hat{K}_{\mathbf{k}}^X, \hat{K}_{\mathbf{k}}^X | \omega') \right|. \quad (4.12)$$

Уравнение (4.7) и уравнение (4.12) являются основными результатами данного раздела и позволяют выделить различия в двухмагнонных спектрах, полученных в КРС и ИВКРС. Во-первых, компоненты рамановского тензора $\eta^{\nu\nu X}$ входят в весовые коэффициенты в выражениях для двух спектров по-разному. Во-вторых, спектр КРС задается мнимой частью функции Грина, тогда как спектр ИВКРС зависит как от действительной, так и от мнимой частей функции.

4.2.3 Особенности спектров комбинационного рассеяния света на двухмагнонных модах

Чтобы проиллюстрировать полученное различие, удобно рассмотреть геометрию прямого рассеяния для КРС с падающим и рассеянным светом, распространяющимся вдоль оси z и имеющим параллельные поляризации $\mathbf{e}_I \parallel \mathbf{e}_S \parallel x$, что дает максимальную интенсивность рассеяния. Для ИВКРС рассматриваются импульсы накачки и пробирования, также распространяющиеся вдоль оси z . Накачка поляризована вдоль оси x , в то время как угол поляризации зондирования равен $\varphi = \pi/4$, где достигается максимальная чувствительность к колебаниям спиновых корреляций 2. Дисперсия магнонов показана на Рис. 4.3(а). Спектры, полученные с использованием уравнений (4.7) и (4.12), представлены на Рис. 4.4(а) в зависимости от нормированной частоты $\omega'/2\Omega_{\max}$, где $2\Omega_{\max} = 2JS/\hbar$ — максимальная частота двухмагнонной моды, которая соответствует краю Бриллюэна [Рис. 4.3(а)]. Параметр затухания $\varepsilon = 0.005 \cdot 2\Omega_{\max}$ выбран малым, чтобы подчеркнуть особые спектральные точки и выявить различия между двумя спектрами.

Ожидаемо, доминирующие вклады в спектр КРС происходят от двухмагнонных мод с $\mathbf{k}$ вблизи края зоны Бриллюэна. Как видно на Рис. 4.3(а), дисперсия становится практически плоской на краю зоны Бриллюэна, и существует большая плотность состояний с соответствующими частотами. Применяя теорему ван Хова к уравнению (4.7), можно получить два типа сингулярностей на краю зоны Бриллюэна. Одна из них — седловая в точках X , а другая — поверхность максимумов, которая описывается выражением $\cos(k^x a) + \cos(k^y a) + \cos(k^z a) = 0$. Это приводит к появлению широкого континуума с двумя особен-

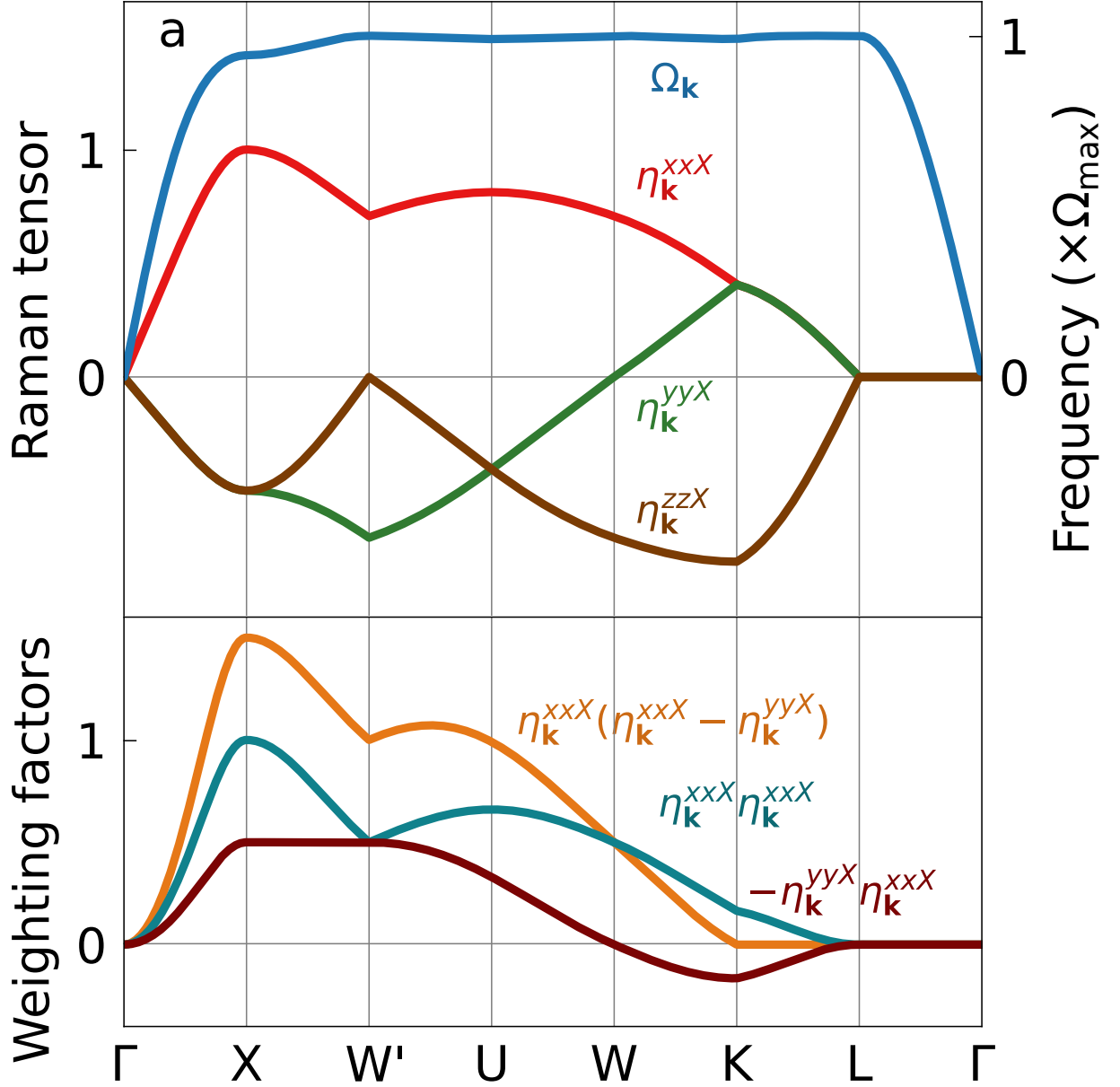


Рисунок 4.3 — (а) Дисперсия магнонов (синяя линия) и дисперсия трех компонент рамановского тензора $\eta_{\mathbf{k}}^{\nu X}$, $\nu = x, y, z$ вдоль пути в зоне Бриллюэна, показанного на Рис. 4.1(а). (б) Дисперсия весовых коэффициентов для КРС $\eta_{\mathbf{k}}^{xxX}\eta_{\mathbf{k}}^{xxX}$ (голубая линия), ИВКРС $\eta_{\mathbf{k}}^{xxX}[\eta_{\mathbf{k}}^{xxX} - \eta_{\mathbf{k}}^{yyX}]$ (оранжевая линия) и их разность $-\eta_{\mathbf{k}}^{yyX}\eta_{\mathbf{k}}^{xxX}$ (коричневая линия).

ностями около $\omega'/2\Omega_{\max} = 1.0$ и 0.95 [Рис. 4.4(а)]. В целом полученный спектр КРС хорошо согласуется с теоретическими спектрами для кубического антиферромагнетика без учета магнон-магнонного рассеяния [12].

В случае ИВКРС теорема ван Хова не может быть применена напрямую, поскольку нельзя перейти от суммирования по $\mathbf{k}$ к суммированию по частотам

в уравнении (4.12). Однако объем в зоне Бриллюэна также играет доминирующую роль в спектре ИВКРС, и можно обнаружить обе особенности в спектре [Рис. 4.4(а)]. В целом, можно заметить два очевидных различия между спектрами КРС и ИВКРС. Во-первых, общий спектр ИВКРС шире, чем спектр КРС. Во-вторых, два локальных максимума при $\omega'/2\Omega_{\max} \approx 1,0$ и $0,95$, присутствующие в обоих спектрах, немного смещены относительно друг друга.

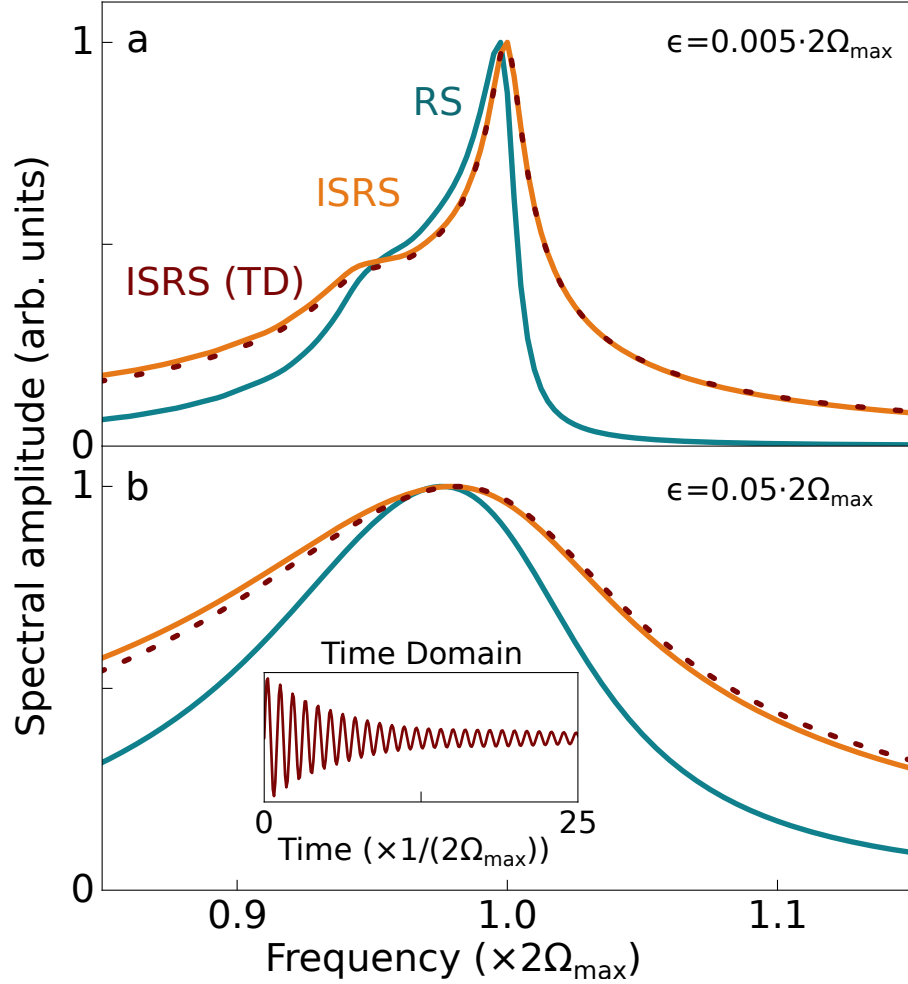


Рисунок 4.4 — Спектры сечения КРС, рассчитанные с использованием уравнения (4.7) с $\alpha = \beta = x$ (голубая сплошная линия), амплитуда ИВКРС, рассчитанная с использованием уравнения (4.12) с $\nu = x$ (оранжевая сплошная линия), и амплитуда ИВКРС, рассчитанная как преобразование Фурье эллиптичности пробирющего импульса [Ур. (2.25)] (пунктирная линия). Параметры затухания: (а) $\epsilon = 0,005 \cdot 2\Omega_{\max}$ и (б) $\epsilon = 0,05 \cdot 2\Omega_{\max}$. На панели (б) показана эллиптичность пробирющего импульса, рассчитанная с использованием уравнения (2.25) с $\epsilon = 0.05 \cdot 2\Omega_{\max}$.

4.3 Сравнительный анализ спектров

4.3.1 Дисперсия рамановского тензора двухмагнонной моды и весовых коэффициентов

Чтобы понять различия между спектрами КРС и ИВКРС, необходимо начать с подробного изучения рамановского тензора, отвечающего за весовые коэффициенты, входящие в выражения Ур. (4.7) и Ур. (4.12). Явное выражение для тензора Рамана, полученное из Ур. (4.4), принимает вид

$$\begin{aligned} \eta_{\mathbf{k}}^{\nu\nu X}(\omega) &\propto \sum_{\delta} F_{\mathbf{k}}^X(\delta) \delta^{\nu} \delta^{\nu} \\ &\propto \sum_{\delta} \frac{\frac{2}{n_a} \sum_{\delta'} \cos(\mathbf{k} \cdot \delta') - \cos(\mathbf{k} \cdot \delta)}{|\mathbf{F}_{\mathbf{k}}|} \delta^{\nu} \delta^{\nu}. \end{aligned} \quad (4.13)$$

В частности, для кубического кристалла:

$$\eta_{\mathbf{k}}^{xxX}(\omega) \propto -\frac{1}{|\mathbf{F}_{\mathbf{k}}|} [2 \cos(\mathbf{k} \cdot \delta^x) - \cos(\mathbf{k} \cdot \delta^y) - \cos(\mathbf{k} \cdot \delta^z)]. \quad (4.14)$$

На Рис. 4.3(а) построена дисперсия $\eta_{\mathbf{k}}^{\nu\nu X}$, $\nu = x, y, z$ вдоль пути в первой зоне Бриллюэна, показанной на Рис. 4.1(а). Очевидно, что двухмагнонные моды из разных точек зоны Бриллюэна по-разному взаимодействуют со светом с разной поляризацией. $\eta_{\mathbf{k}}^{\nu\nu X} = 0$ в определенной точке зоны Бриллюэна означает, что электрическое поле света с данной поляризацией E^{ν} не взаимодействует с этой конкретной двухмагнонной модой. В терминах эффективного поля это соответствует $\mathbf{F}_{\mathbf{k}}(\delta^{\nu}) \parallel Z$, т.е. его возмущение светом не отклоняет полное эффективное поле $\mathbf{F}_{\mathbf{k}}$, как показано на Рис. 4.3(д) для точки W, где $\eta^{yyX} = 0$.

Для более полной картины, на Рис. 4.5(а-с) представлено распределение восприимчивостей $\eta_{\mathbf{k}}^{xxX}$ и $\eta_{\mathbf{k}}^{yyX}$ и частот в плоскости $k^x k^y$ и на поверхности зоны Бриллюэна. Эти карты показывают, что абсолютные максимумы $\eta_{\mathbf{k}}^{xxX}$ и $\eta_{\mathbf{k}}^{yyX}$ находятся в различных точках X, $(\pi/a, 0, 0)$ и $(0, \pi/a, 0)$ соответственно. Третья компонента $\eta_{\mathbf{k}}^{zzX}$, по аналогии с другими, имеет максимальное значение в точке $(0, 0, \pi/a)$. Эти результаты можно обосновать, заметив, что эти точки соответствуют магнонам с волновыми векторами $k = \pi/a$, направленными вдоль одной из связей. Тогда такой магнон проявляет наибольшую восприимчивость к возмущению обменной связи между ближайшими соседями вдоль той же связи.

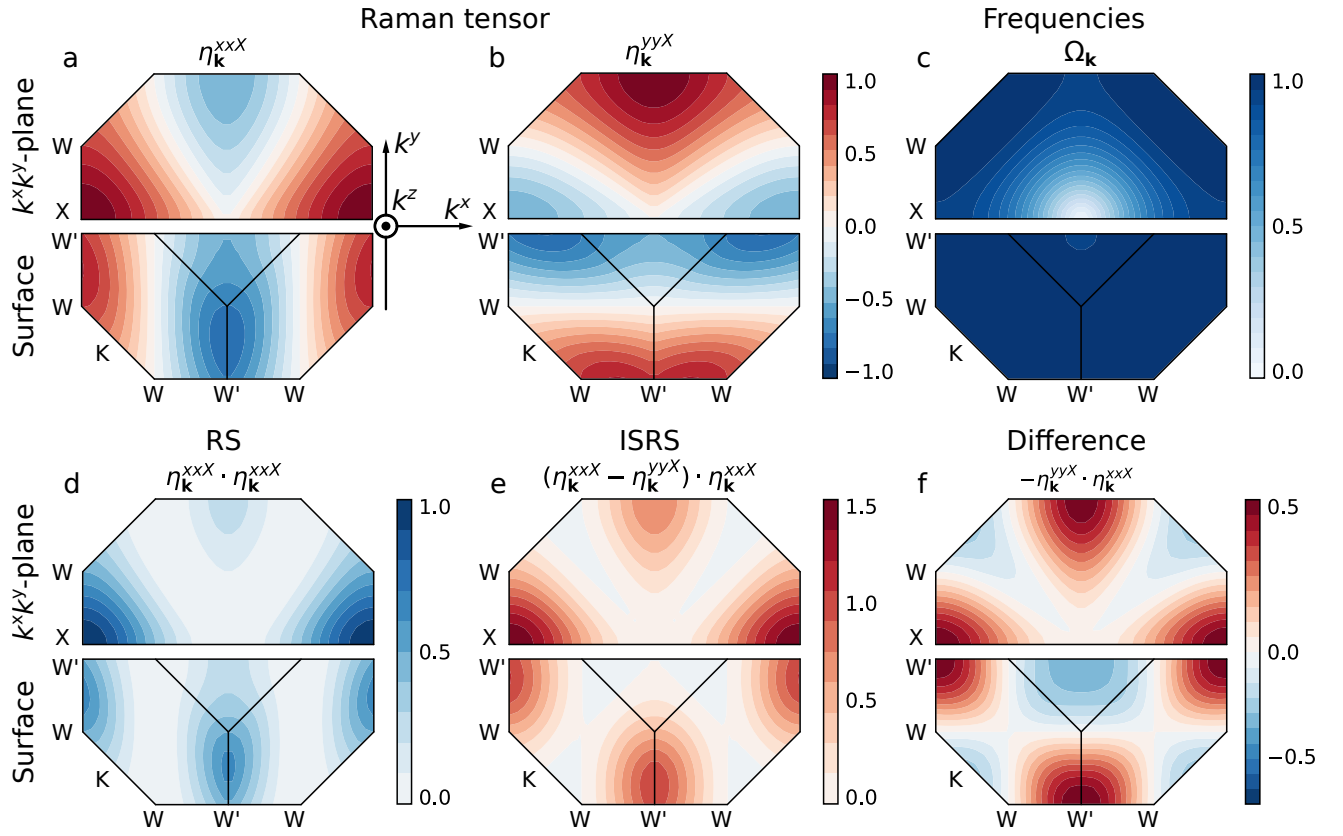


Рисунок 4.5 — (a, b) Двухмагنونный рамановский тензор $\eta_{\mathbf{k}}^{\nu\nu X}$, $\nu = x, y$, и (c) нормированные частоты магнов $\Omega_{\mathbf{k}}/\Omega_{\max}$ в плоскости $k^x k^y$ (верхние панели) и на поверхности первой зоны Бриллюэна (нижние панели). (d, e) Весовые коэффициенты для КРС и ИВКРС и (f) их разность в той же плоскости и на той же поверхности.

Весовой коэффициент КРС $\eta_{\mathbf{k}}^{xxX} \eta_{\mathbf{k}}^{xxX}$ обладает абсолютным максимумом в точке X $(\pi/a, 0, 0)$, как показано на 4.5(d). Явная форма весового коэффициента для КРС имеет вид $[\cos k^x a - 1/3 (\cos k^x a + \cos k^y a + \cos k^z a)]$. Представленные данные показывают, что двухмагنونные моды, соответствующие малым волновым векторам, слабо влияют на спектр КРС из-за слабой связи со светом в дополнение к малому объему соответствующей области зоны Бриллюэна. Легко заметить, что спектры КРС для света, поляризованного вдоль оси y , $\mathbf{e}_I || \mathbf{e}_S || y$, определяемые весовым коэффициентом $\eta_{\mathbf{k}}^{yyX} \eta_{\mathbf{k}}^{yyX}$, будут иметь те же спектры, что показаны на Рис. 4.4(a) из-за высокой симметрии кристалла.

Обсуждение выше также справедливо для спектра ИВКРС, при этом весовой коэффициент $(\eta_{\mathbf{k}}^{xxX} - \eta_{\mathbf{k}}^{yyX}) \eta_{\mathbf{k}}^{xxX}$ имеет абсолютный максимум вблизи точки X [Рис. 4.3(b) и 4.5(e)]. Тем не менее, дисперсии весовых коэффициентов КРС и ИВКРС различаются. Чтобы подчеркнуть это, на Рис. 4.3(b) и 4.5(f) построена разность $-\eta_{\mathbf{k}}^{yyX} \eta_{\mathbf{k}}^{xxX}$ между двумя весовыми коэффициентами. Очевидно, что

разница имеет свою собственную дисперсию. Наиболее заметно, что на участке К-Л, представленном на Рис. 4.3(b), двухмагнонные моды дают относительно слабый, но конечный вклад только в спектр КРС. Обсуждаемое различие между весовыми коэффициентами в КРС и ИВКРС вытекает из того факта, что, получая спектр с помощью измерения наведенного двулучепреломления в эксперименте по ИВКРС, измеряют фазовый сдвиг между двумя световыми волнами, которые по-разному связываются с одной и той же двухмагнонной модой. Это либо усиливает, либо подавляет вклад конкретной моды в сигнал.

Дисперсии рамановских тензоров и весовых коэффициентов подчеркивают важную особенность связи двухмагнонных мод со светом. Например, из уравнения (4.14) легко увидеть, что свет, поляризованный вдоль оси x , связывается с модой, образованной магнонами с $\mathbf{k} \parallel x$, в два раза сильнее, чем с магнонами с $\mathbf{k} \parallel z$ или y . Таким образом, избирательность, по крайней мере частичная, по волновому вектору магнона определяется поляризацией света, то есть возникает возможность определять направление возбуждаемых магнонных пар поляризацией света даже в кубическом магнитно изотропном материале. Это добавляет важное различие между возбуждением двухмагнонных и одномагнонных мод лазерными импульсами. В последнем случае правила отбора относительно волнового вектора генерируемого или пробирываемого магнона требуют пространственной и спектральной модуляции лазерных импульсов [68—71].

Таким образом, в кубическом кристалле дисперсия весовых коэффициентов приводит к относительному увеличению спектральной амплитуды вблизи частоты, соответствующей точкам X. Обнаружено, что это не зависит от типа эксперимента (КРС или ИВКРС) или от схемы детектирования и связано с тем фактом, что дисперсия магнонов оказывается плоской вблизи границ зоны Бриллюэна, и можно выделить только две основные частоты, занимающие наибольшие относительные объемы зоны. Таким образом, разница между спектрами КРС и ИВКРС [Рис. 4.4(a)] имеет другое происхождение.

4.3.2 Относительный сдвиг и уширение спектров КРС и ИВКРС

Сравнение спектров КРС и ИВКРС [Рис. 4.4(a)] показывает, что спектр ИВКРС значительно шире. Кроме того, в двух спектрах наблюдается относи-

тельное смещение особенностей на частотах $\omega'/2\Omega_{\max} \approx 0.95$ и 1. Эти различия вытекают из характера спиновой динамики, исследуемой в двух случаях, и из того факта, что возбуждается целый континуум мод. В то время как КРС измеряет популяции и энергии тепловых двухмагнонных мод в равновесии, ИВКРС предоставляет информацию об амплитуде и фазе когерентных двухмагнонных мод. Далее будет описано, почему вышеупомянутые спектральные различия вызваны (i) чувствительностью ИВКРС к фазе сигнала и (ii) чувствительностью КРС и ИВКРС к континууму мод.

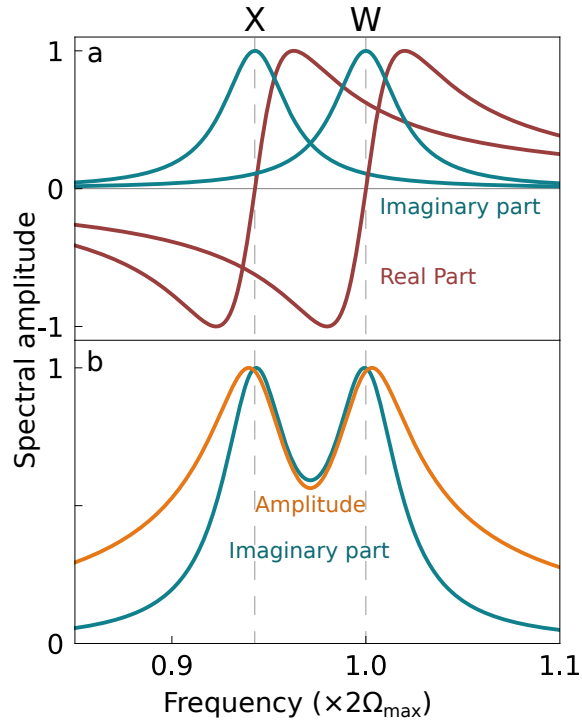


Рисунок 4.6 — (a) Действительные (коричневые линии) и мнимые (голубые линии) части спектров двух независимых возбуждений с широкими спектрами и частотами, соответствующими двухмагнонным модам в точках X и W зоны Бриллюэна. (b) Суммарный спектр мнимой части (голубая линия; аналогия КРС) и амплитуды (оранжевая линия; аналогия ИВКРС) двух возбуждений, который показывает относительное смещение пиков в спектрах и уширение последнего спектра.

Чтобы понять наблюдаемые особенности, удобно начать с описания всего двух осцилляторов с конечной спектральной шириной. Для ясности были выбраны осцилляторы с частотами, соответствующими точкам X и W зоны Бриллюэна [Рис. 4.6(a)]. Поскольку в случае КРС интерес представляют только силы осцилляторов, достаточно рассмотреть только мнимые части их откли-

ка, и результирующий спектр будет дан их суммой [Рис. 4.6(b)]. Максимумы в спектре расположены на собственных частотах осцилляторов. Когда доступна информация как о действительной, так и о мнимой частях спектра, т. е. в случае ИВКРС, можно построить амплитудный спектр [Рис. 4.6(b)]. Два максимума в спектре осцилляторов, смещены относительно собственных частот мод, что в случае равных сил осцилляторов приводит к смещению пика осциллятора с низкой частотой (мода X) в сторону более низких частот, а пика осциллятора с высокой частотой (мода W) в сторону немного более высокой частоты. Аналогичным образом, для континуума мод можно ожидать соответствующих сдвигов. Поскольку спектр ИВКРС содержит моды с различными силами осцилляторов, спектр асимметричен, и сдвиг пика самой высокой частоты наиболее очевиден.

Таким образом, можно прийти к выводу, что относительный сдвиг спектральных особенностей в спектрах КРС и ИВКРС не следует приписывать разным модам, дающим основной вклад в соответствующие сигналы, несмотря на разницу в весовых коэффициентах, обсуждавшуюся выше. Вместо этого, данный эффект напрямую следует из того факта, что двухмагنونные спектры как в КРС, так и в ИВКРС включают вклады от многих мод с разными частотами. Действительно, если рассматривать спектры КРС и ИВКРС одномагнанных мод, то только отдельные моды с определенным $\mathbf{k}$ вносят вклад в сигнал, а их спектральные линии, как правило, не перекрываются. Это либо моды с $k = 0$ в случае однородного лазерного возбуждения, либо $k > 0$ в случае возбуждения с использованием дифракционных решеток [34; 35]. В результате, хотя спектр может быть дополнительно расширен за счет когерентной части, его смещения как единого целого не наблюдается [52; 72].

4.3.3 Сравнение с экспериментальными данными

Прежде чем приступить к сравнению полученных результатов с имеющимися экспериментальными данными, стоит отметить, что представленный анализ не включает магнон-магنونное рассеяние, и применимо к материалам с незначительным магнон-магنونным взаимодействием. Известно, что этот эффект изменяет форму линии спектра КРС и, в частности, смещает высо-

кочастотную особенность в сторону более низких частот [Рис. 1.2] поскольку образуется дополнительное связанное состояние [12; 65; 73], однако в некоторых антиферромагнетиках этот эффект может быть достаточно слабым [74]. Тем не менее, можно утверждать, что основные выводы, сделанные на основе представленного анализа, должны быть справедливы и для реалистичных спектров. Действительно, разный форма, в которой функция Грина от $\hat{K}_k^X$ входит в выражения для двух спектров, сохраняется и в этом случае. Учет магнон-магнонного рассеяния приводит к перенормировке только самой функции Грина [12; 32] и не изменяет ни рамановский тензор, ни весовые коэффициенты. Это, в частности, означает, что относительный сдвиг пика в КРС и ИВКРС все еще может присутствовать. Для иллюстрации данного тезиса был рассмотрен более реалистичном случае с сильным затуханием, который показан на Рис. 4.4(b), $\epsilon = 0.05 \cdot 2\Omega_{\max}$. Как видно, низкочастотная особенность в таком случае не выражена, но относительный сдвиг основного максимума все еще различим.

Поскольку в экспериментах спектры получаются с использованием преобразования Фурье для получаемых сигналов, на Рис. 4.4(a, b) построены преобразования Фурье для зависящей от времени эллиптичности пробирующего импульса, рассчитанные с использованием подхода, подробно описанного в главах 2 и 3. Здесь экспоненциальное затухание $e^{-\epsilon t}$ было введено для каждой индивидуальной моды. Временная зависимость, полученная для низкого значения ϵ , показана на вставке на Рис. 4.4(b). Как можно видеть, если временное окно измерения достаточно велико по сравнению со временем затухания, существует пренебрежимо малое расхождение между таким спектром и спектром, рассчитанным с использованием уравнения (4.12). В целом, кажущееся затухание двухмагнонных сигналов во временной области, о котором сообщалось до сих пор, достаточно сильное и является ведущим эффектом, ответственным за большую спектральную ширину сигналов ИВКРС.

В [38; 39] были напрямую сопоставлены двухмагнонные спектры, полученные в экспериментах КРС и ИВКРС. В [39] был исследован кубический гейзенберговский антиферромагнетик KNiF_3 , для которого представленная модель применима напрямую. В [38] были изучены более сложные тетрагональные антиферромагнетики FeF_2 и NiF_2 , имеющие структуру рутила. Примечательно, что обе работы сообщают о смещении максимумов спектра ИВКРС относительно КРС, что находится в хорошем согласии с представленным теоретическим анализом. Важно, что в [38] была поставлена под сомнение обоснованность

определения двухмагنونной частоты из данных ИВКРС. Показанный анализ, действительно, подтверждает, что необходимо иметь в виду, что спектры КРС и ИВКРС, как правило, различны, поскольку когерентный отклик ансамбля почти вырожденных мод приводит к значительному уширению и небольшому сдвигу спектра по сравнению с диссипативным откликом тех же мод. Более того, из-за разной дисперсии весовых коэффициентов исследуются разные состояния. Также сравнительное исследование спектров КРС и разрешенных по времени спектров КРС в KNiF_3 также было опубликовано в [75]. Однако в обоих этих случаях спектр КРС был наблюдаемым, либо в равновесии, либо при лазерном возбуждении, что отличается от схемы обнаружения, рассматриваемой в настоящей работе.

4.4 Заключение к Главе 4

В данной главе были выведены уравнения для спектров сечения КРС и эллиптичности пробирующего импульса ИВКРС на двухмагنونной моде в едином теоретическом подходе, основанном на псевдовекторах спиновых корреляций и эффективных полях обменного взаимодействия, зависящих от связей между ближайшими магнитными ионами. Эти уравнения выявляют различия между спектрами, которые прослеживают различия в (i) способе взаимодействия света с модами и (ii) характере динамики спиновой системы. Во-первых, в то время как КРС исследует заселенность некогерентных двухмагنونных мод, ИВКРС также содержит фазовую информацию о когерентных модах. Поэтому спектр КРС определяется только к мнимой части функции Грина псевдовектора спиновой корреляции, в то время как спектр ИВКРС зависит от абсолютного значения, т. е. как от действительной, так и от мнимой части этой функции Грина. Важно, что поскольку двухмагنونный отклик состоит из всех мод в зоне Бриллюэна, возникают различия, которые не видны для спектрально изолированных мод. В частности, поскольку двухмагنونный отклик характеризуется спектрально перекрывающимися вкладами мод, наблюдается относительный сдвиг пиков в двух спектрах, также обнаруженный ранее в экспериментах. Кроме того, когерентная спиновая динамика дает спектр с шириной, значительно превышающий ширину, определяемую затуханием отдельных мод.

Во-вторых, была выведена и проанализирована двухмагнонная дисперсия раманановского тензора, который характеризует связь пары магнонов со светом в зависимости от длины и направления волнового вектора магнона. Подтверждено аналитически и численно, что магноны с краев зоны Бриллюэна в целом сильнее связаны со светом из-за природы этой связи — вызванное светом возмущение обмена оказывает наибольшее влияние на коротковолновые магноны. Кроме того, поскольку обменная связь и коротковолновые магноны связаны со структурой кристалла, поляризация света определяет, какая связь подвергается возмущению, при этом активнее возбуждаются пары магнонов, волновые векторы которых направлены вдоль этой связи. Дисперсия рамановского тензора приводит к возникновению нетривиальной дисперсии весовых коэффициентов, полностью описывающих взаимодействие света со спином в экспериментах КРС и ИВКРС. Показано, что разный состав весовых коэффициентов, входящих в выражения для спектров КРС и ИВКРС, может, в общем случае, приводить к различию в их чувствительности к двухмагнонным модам в различных областях зоны Бриллюэна. Более того, вариативность схем детектирования в ИВКРС позволяет настраивать эти весовые коэффициенты. Однако в рассматриваемом кубическом антиферромагнетике этот эффект оказывается невыраженным из-за почти плоской дисперсии частоты магнонов на границе зоны Бриллюэна.

Заключение

Основные результаты работы 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/см^2 .
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 двухмагنونной моде, описывается дифференциальным уравнением первого порядка, что показывает отсутствие инерции, характерной для однородной динамики антиферромагнитного вектора. Также для возбуждения двухмагнанных мод имеется характерная длительность возбуждения порядка $1/4$ обратной частоты двухмагнонной моды.
4. Спектры спонтанного комбинационного рассеяния света и импульсного вынужденного комбинационного рассеяния света на двухмагнанных модах обладают несколькими отличиями. Ширина спектра увеличивается, а положение пика смещается, что связано с когерентным характером двухмагнанных мод, детектируемых в данном случае.

Таким образом, результаты работы демонстрируют перспективность использования спиновых корреляций для описания терагерцевой магнитной динамики в антиферромагнетиках, связанной с двухмагнанными модами. Представлен оригинальный формализм псевдовекторов спиновых корреляций, а также получены уравнение движения и гамильтониан, с использованием эффективного

поля обменного взаимодействия. На основе представленного формализма получены дисперсионные соотношения для рамановского тензора. Построены спектры двухмагнонных мод для различных экспериментальных методик по комбинационному рассеянию света. Полученные результаты открывают новые возможности проведения экспериментов по магнитной терагерцевой динамике в антиферромагнетиках.

Благодарности

Автор, в первую очередь, выражает благодарность и большую признательность научному руководителю А. М. Калашникове за мотивацию, опыт и научное руководство. Также автор благодарит научного консультанта J. H. Mentink за неоценимый опыт и знания. Автор благодарит весь коллектив лаб. Физики ферроиков ФТИ, в частности Р. М. Дубровина, Д. В. Кунту, Е. А. Архипову за обсуждение результатов работы, конструктивную критику и удовольствие совместной работы, весь коллектив лаб. Оптических явлений в сегнетоэлектрических и магнитоупорядоченных кристаллах ФТИ. Также автор желает поблагодарить весь коллектив лаб. Сверхбыстрой спектроскопии коррелированных материалов кафедры Спектроскопии твёрдых тел и интерфейсов Университета Радбауд, в частности А. В. Кимеля, G. Fabiani и M. D. Bouman за интенсивные обсуждения результатов работы. Автор также благодарит всех своих соавторов, кто сделал настоящую работу возможной.

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. — Т. 110, № 17. — С. 174439.

Список литературы

- 1. *Aizu, K.* Possible species of ferromagnetic, ferroelectric, and ferroelastic crystals / K. Aizu // Physical Review B. — 1970. — Т. 2, № 3. — С. 754.
- 2. *Scott, J. F.* Ferroelectric memories / J. F. Scott, C. A. Paz de Araujo // Science. — 1989. — Т. 246, № 4936. — С. 1400—1405.
- 3. *Plumer, M. L.* The physics of ultra-high-density magnetic recording. Т. 41 / M. L. Plumer, J. Van Ek, D. Weller. — Springer Science & Business Media, 2001.
- 4. *Mikolajick, T.* The past, the present, and the future of ferroelectric memories / T. Mikolajick, U. Schroeder, S. Slesazek // IEEE Transactions on Electron Devices. — 2020. — Т. 67, № 4. — С. 1434—1443.
- 5. The 2021 magnonics roadmap / A. Barman [и др.] // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2021. — Т. 33, № 41. — С. 413001.

6. The 2024 magnonics roadmap / B. Flebus [и др.] // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2024. — ИЮНЬ. — Т. 36, № 36. — С. 363501. — URL: <https://dx.doi.org/10.1088/1361-648X/ad399c>.
7. *Bloch, F.* Zur theorie des austauschproblems und der remanenzerscheinung der ferromagnetika / F. Bloch, F. Bloch. — Springer, 1932.
8. *Holstein, T.* Field dependence of the intrinsic domain magnetization of a ferromagnet / T. Holstein, H. Primakoff // Physical Review. — 1940. — Т. 58, № 12. — С. 1098.
9. *Dyson, F. J.* General theory of spin-wave interactions / F. J. Dyson // Physical review. — 1956. — Т. 102, № 5. — С. 1217.
10. *Shull, C. G.* Neutron diffraction by paramagnetic and antiferromagnetic substances / C. G. Shull, W. Strauser, E. Wollan // Physical Review. — 1951. — Т. 83, № 2. — С. 333.
11. *Loudon, R.* The Raman effect in crystals / R. Loudon // Adv. Phys. — 1964. — Т. 13, № 52. — С. 423—482. — URL: <https://doi.org/10.1080/00018736400101051>.
12. *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. — Т. 2, № 9. — С. 1630. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3719/2/9/312>.
13. *Ferre, J.* Linear optical birefringence of magnetic crystals / J. Ferre, G. A. Gehring // Reports on Progress in Physics. — 1984. — Май. — Т. 47, № 5. — С. 513. — URL: <https://dx.doi.org/10.1088/0034-4885/47/5/002>.
14. *Smolenskiĭ, G. A.* Birefringence of light in magnetically ordered crystals / G. A. Smolenskiĭ, R. V. Pisarev, I. G. Siniĭ // Soviet Physics Uspekhi. — 1975. — Т. 18, № 6. — С. 410—429. — URL: <https://doi.org/10.1070/pu1975v018n06abeh001964>.
15. *Fiebig, M.* Second-harmonic generation as a tool for studying electronic and magnetic structures of crystals / M. Fiebig, V. V. Pavlov, R. V. Pisarev // JOSA B. — 2005. — Т. 22, № 1. — С. 96—118.
16. Antiferromagnetic opto-spintronics / P. Němec [и др.] // Nat. Phys. — 2018. — Т. 14, № 3. — С. 229—241. — URL: <https://doi.org/10.1038/s41567-018-0051-x>.

17. Non-equilibrium magnetic interactions in strongly correlated systems / A. Secchi [и др.] // *Annals of Physics*. — 2013. — Т. 333. — С. 221—271.
18. *Kitamura, S.* Probing and controlling spin chirality in Mott insulators by circularly polarized laser / S. Kitamura, T. Oka, H. Aoki // *Physical Review B*. — 2017. — Т. 96, № 1. — С. 014406.
19. Dynamical time-reversal symmetry breaking and photo-induced chiral spin liquids in frustrated Mott insulators / M. Claassen [и др.] // *Nature Communications*. — 2017. — Т. 8. — С. 1192.
20. *Mentink, J. H.* Ultrafast quenching of the exchange interaction in a Mott insulator / J. H. Mentink, M. Eckstein // *Phys. Rev. Lett.* — 2014. — Т. 113, № 5. — С. 057201.
21. *Mentink, J. H.* Ultrafast and reversible control of the exchange interaction in Mott insulators / J. H. Mentink, K. Balzer, M. Eckstein // *Nature communications*. — 2015. — Т. 6. — С. 6708.
22. *Bukov, M.* Schrieffer-Wolff transformation for periodically driven systems: Strongly correlated systems with artificial gauge fields / M. Bukov, M. Kolodrubetz, A. Polkovnikov // *Physical review letters*. — 2016. — Т. 116, № 12. — С. 125301.
23. Ultrafast Generation of Ferromagnetic Order via a Laser-Induced Phase Transformation in FeRh Thin Films / G. Ju [и др.] // *Physical Review Letters*. — 2004. — Т. 93, вып. 19. — С. 197403. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.93.197403>.
24. *Thiele, J.-U.* Spin dynamics of the antiferromagnetic-to-ferromagnetic phase transition in FeRh on a sub-picosecond time scale / J.-U. Thiele, M. Buess, C. H. Back // *Applied Physics Letters*. — 2004. — Т. 85, № 14. — С. 2857—2859.
25. Ultrafast coupling between light, coherent lattice vibrations, and the magnetic structure of semicovalent LaMnO₃ / S. Wall [и др.] // *Physical Review Letters*. — 2009. — Т. 103, № 9. — С. 097402.
26. All-optical manipulation and probing of the d-f exchange interaction in EuTe / R. R. Subkhangulov [и др.] // *Scientific reports*. — 2014. — Т. 4. — С. 4368.

27. Ultrafast optical modification of exchange interactions in iron oxides / R. V. Mikhaylovskiy [и др.] // Nature Communications. — 2015. — Т. 6, № 1. — С. 8190. — URL: <https://doi.org/10.1038/ncomms9190>.
28. *Rhie, H.-S.* Femtosecond Electron and Spin Dynamics in Ni/W (110) Films / H.-S. Rhie, H. A. Dürr, W. Eberhardt // Physical Review Letters. — 2003. — Т. 90, № 24. — С. 247201.
29. Ultrafast optical tuning of ferromagnetism via the carrier density / M. Matsubara [и др.] // Nature Communications. — 2015. — Т. 6. — С. 6724.
30. *Khokhlov, N. E.* Spatial asymmetry of optically excited spin waves in anisotropic ferromagnetic film / N. E. Khokhlov, I. A. Filatov, A. Kalashnikova // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 2024. — Т. 589. — С. 171514.
31. *Loudon, R.* Theory of infra-red and optical spectra of antiferromagnets / R. Loudon // Adv. Phys. — 1968. — Т. 17, № 66. — С. 243—280.
32. *Balucani, U.* Theory of two-magnon Raman scattering in the ordered region for cubic antiferromagnets / U. Balucani, V. Tognetti // Phys. Rev. B. — 1973. — Т. 8, № 9. — С. 4247.
33. *Cottam, M. G.* Theory of two-magnon Raman scattering in antiferromagnets at finite temperatures / M. G. Cottam // J. Phys. C: Solid State Phys. — 1972. — Т. 5, № 12. — С. 1461. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3719/5/12/022>.
34. *Yan, Y.-X.* Impulsive stimulated light scattering. I. General theory / Y.-X. Yan, K. A. Nelson // J. Chem. Phys. — 1987. — Т. 87, № 11. — С. 6240—6256. — URL: <https://doi.org/10.1063/1.453733>.
35. *Yan, Y.-X.* Impulsive stimulated light scattering. II. Comparison to frequency-domain light-scattering spectroscopy / Y.-X. Yan, K. A. Nelson // J. Chem. Phys. — 1987. — Т. 87, № 11. — С. 6257—6265. — URL: <https://doi.org/10.1063/1.453454>.
36. Fundamentals and perspectives of ultrafast photoferroic recording / A. Kimel [и др.] // Physics Reports. — 2020. — Т. 852. — С. 1—46. — URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0370157320300144>.

37. 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>.
38. 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>.
39. 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>.
40. Laser-driven quantum magnonics and terahertz dynamics of the order parameter in antiferromagnets / D. Bossini [и др.] // Physical Review B. — 2019. — Т. 100, № 2. — С. 024428.
41. *Fabiani, G.* Ultrafast dynamics of entanglement in Heisenberg antiferromagnets / G. Fabiani, J. H. Mentink // Physical Review B. — 2022. — Т. 105, № 9. — С. 094438.
42. *Wuhrer, D.* Theory of quantum entanglement and structure of the two-mode squeezed antiferromagnetic magnon vacuum / D. Wuhrer, N. Rohling, W. Belzig // Physical Review B. — 2022. — Т. 105, № 5. — С. 054406.
43. *Mentink, J. H.* Manipulating magnetism by ultrafast control of the exchange interaction / J. H. Mentink // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2017. — Т. 29, № 45. — С. 453001. — URL: <https://doi.org/10.1088/1361-648x/aa8abf>.
44. *Fabiani, G.* Supermagnonic Propagation in Two-Dimensional Antiferromagnets / G. Fabiani, M. D. Bouman, J. H. Mentink // Phys. Rev. Lett. — 2021. — Т. 127, вып. 9. — С. 097202. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.127.097202>.
45. Lattice-driven femtosecond magnon dynamics in $\alpha\text{-MnTe}$ / K. Deltenre [и др.] // Physical Review B. — 2021. — Т. 104, вып. 18. — С. 184419. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.104.184419>.
46. *Anderson, P.* Limits on the energy of the antiferromagnetic ground state / P. Anderson // Phys. Rev. — 1951. — Т. 83, № 6. — С. 1260.

47. *Bogolyubov, N. N.* A new method in the theory of superconductivity / N. N. Bogolyubov, V. Tolmachev, D. V. Shirkov // *Nuovo Cim.* — 1958. — T. 7. — C. 794—805.
48. *Schrieffer, J. R.* Relation between the Anderson and Kondo Hamiltonians / J. R. Schrieffer, P. A. Wolff // *Physical Review.* — 1966. — T. 149, № 2. — C. 491.
49. *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.
50. *Kubo, R.* Statistical-mechanical theory of irreversible processes. I. General theory and simple applications to magnetic and conduction problems / R. Kubo // *Journal of the Physical Society of Japan.* — 1957. — T. 12, № 6. — C. 570—586.
51. 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.
52. Excitation of multiple phonon modes in copper metaborate CuB_2O_4 via nonresonant impulsive stimulated Raman scattering / K. Imasaka [и др.] // *Physical Review B.* — 2018. — T. 98, вып. 5. — C. 054303. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.98.054303>.
53. Magneto-optical study of the ${}^3\text{A}_2$ to ${}^1\text{E}_g$ transition in magnetic crystals KNiF_3 , Rb_2NiF_4 , $\text{K}_3\text{Ni}_2\text{F}_7$, RbNiF_3 / R. V. Pisarev [и др.] // *Journal of Physics C: Solid State Physics.* — 1974. — T. 7, № 22. — C. 4143.
54. *Lines, M. E.* Comparative Studies of Magnetism in KNiF_3 and K_2NiF_4 / M. E. Lines // *Physical Review.* — 1967. — T. 164, № 2. — C. 736.
55. *Mattheiss, L. F.* Energy Bands for KNiF_3 , SrTiO_3 , KMoO_3 , and KTaO_3 / L. F. Mattheiss // *Physical Review B.* — 1972. — T. 6, № 12. — C. 4718.
56. *De Jongh, L.* On the exchange interactions in some 3d-metal ionic compounds: I. The 180° superexchange in the 3d-metal fluorides XMF_3 and X_2MF_4 ($\text{X}=\text{K}, \text{Rb}, \text{Tl}$; $\text{M}=\text{Mn}, \text{Co}, \text{Ni}$) / L. De Jongh, R. Block // *Physica B+C.* — 1975. — T. 79, № 6. — C. 568—593. — URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0378436375900339>.

57. Incipient geometric lattice instability of cubic fluoroperovskites / R. M. Dubrovин [и др.] // Physical Review B. — 2021. — Т. 104, № 14. — C. 144304.
58. *Ferré, J.* Magnetic-field- and stress-induced linear birefringence in cubic antiferromagnets RbMnF₃, KNiF₃ and KCoF₃ / J. Ferré // Journal of Physics C: Solid State Physics. — 1983. — Т. 16, № 20. — C. 3971–3986. — URL: <https://doi.org/10.1088/0022-3719/16/20/019>.
59. Laser-induced THz magnetism of antiferromagnetic CoF₂ / F. Formisano [и др.] // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2022. — Март. — Т. 34, № 22. — C. 225801. — URL: <https://doi.org/10.1088/1361-648x/ac5c20>.
60. Femtosecond magneto-optics of EuO / F. Formisano [и др.] // J. Magn. Magn. Mater. — 2020. — Т. 502. — C. 166479. — URL: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2020.166479>.
61. Inertia-driven spin switching in antiferromagnets / A. V. Kimel [и др.] // Nat. Phys. — 2009. — Т. 5, № 1. — C. 727–731. — URL: <https://doi.org/10.1038/nphys1369>.
62. *Birss, R. R.* Symmetry and magnetism / R. R. Birss. — North-Holland Amsterdam, 1964.
63. *Windsor, C. G.* Spin waves in RbMnF₃ / C. G. Windsor, R. W. H. Stevenson // Proc. Phys. Soc. — 1966. — Т. 87, № 2. — C. 501. — URL: <https://doi.org/10.1088/0370-1328/87/2/319>.
64. Impulsive Generation of Coherent Magnons by Linearly Polarized Light in the Easy-Plane Antiferromagnet FeBO₃ / A. M. Kalashnikova [и др.] // Phys. Rev. Lett. — 2007. — Т. 99, вып. 16. — C. 167205. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.99.167205>.
65. *Fleury, P. A.* Evidence for Magnon-Magnon Interactions in RbMnF₃ / P. A. Fleury // Phys. Rev. Lett. — 1968. — Т. 21, вып. 3. — C. 151–153. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.21.151>.
66. *Fabiani, G.* Parametrically driven THz magnon-pairs: Predictions toward ultimately fast and minimally dissipative switching / G. Fabiani, J. H. Mentink // Appl. Phys. Lett. — 2022. — Т. 120, № 15. — C. 152402. — URL: <https://doi.org/10.1063/5.0080161>.

67. *Cottam, M. G.* Light scattering in magnetic solids / M. G. Cottam, D. J. Lockwood // (No Title). — 1986.
68. Directional control of spin-wave emission by spatially shaped light / T. Satoh [и др.] // Nat. Photon. — 2012. — Т. 6, № 10. — С. 662—666.
69. Coherent spin-wave transport in an antiferromagnet / J. Hortensius [и др.] // Nat. Phys. — 2021. — Т. 17, № 9. — С. 1001—1006.
70. Spectrum evolution and chirping of laser-induced spin wave packets in thin iron films / I. A. Filatov [и др.] // Applied Physics Letters. — 2022. — Т. 120, № 11. — С. 112404.
71. Tuning the directionality of spin waves generated by femtosecond laser pulses in a garnet film by optically driven ferromagnetic resonance / A. E. Khramova [и др.] // Phys. Rev. B. — 2023. — Т. 107, вып. 6. — С. 064415. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.107.064415>.
72. *Merlin, R.* Generating coherent THz phonons with light pulses / R. Merlin // Solid State Commun. — 1997. — Т. 102, № 2. — С. 207—220. — URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0038109896007211> ; Highlights in Condensed Matter Phys. and Materials Science.
73. *Bouman, M.* Time-dependent Schwinger boson mean-field theory of supermagnonic propagation in 2D antiferromagnets / M. Bouman, J. Mentink // arXiv preprint arXiv:2306.16382. — 2023.
74. *Prosnikov, M. A.* One- and two-magnon excitations in the antiferromagnet PbFeBO₄ / M. A. Prosnikov // Phys. Rev. B. — 2021. — Т. 103, вып. 9. — С. 094443. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.103.094443>.
75. Probing ultrafast photo-induced dynamics of the exchange energy in a Heisenberg antiferromagnet / G. Batignani [и др.] // Nature Photonics. — 2015. — Т. 9, № 8. — С. 506—510.