

СВЕРХБЫСТРАЯ СПИНОВАЯ ДИНАМИКА В ЛЕГКОПЛОСКОСТНОМ СЛАБОМ ФЕРРОМАГНЕТИКЕ БОРАТЕ ЖЕЛЕЗА

А. К. Звездин^{a*}, А. В. Кимель^b, Д. И. Плохов^{a**}, К. А. Звездин^a

^a Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия

^b Radboud University, Institute for Molecules and Materials
6525, AJ Nijmegen, The Netherlands

Поступила в редакцию 15 февраля 2020 г.,
после переработки 30 марта 2020 г.
Принята к публикации 9 апреля 2020 г.

Теоретически рассмотрены сверхбыстрые процессы спиновой динамики в борате железа FeBO_3 : показано, какие механизмы ответственны за возбуждение как квазиферромагнитной, так и квазиантиферромагнитной мод спинового резонанса однопериодным терагерцевым импульсом. В полном согласии с экспериментальными наблюдениями [27] возбуждение высокочастотной квазиантиферромагнитной моды носит резонансный характер, ее амплитуда линейно зависит от величины электрического поля терагерцевого импульса. Амплитуда низкочастотной квазиферромагнитной моды квадратично зависит от величины электрического поля импульса, возбуждение этой моды происходит по механизму обратного эффекта Коттона – Мутона.

Статья для специального выпуска ЖЭТФ, посвященного 100-летию А. С. Боровика-Романова

DOI: 10.31857/S0044451020070123

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время одним из наиболее активно исследуемых антиферромагнетиков является тригональный (ромбоэдрический) антиферромагнетик борат железа FeBO_3 . Большой интерес к нему связан не только со сравнительно высокой температурой Нееля ($T_N = 348$ К), но и с целым рядом интересных физических свойств: магнитных, оптических, акустических и др.

Прогресс последних лет, связанный с генерацией мощных ультракоротких лазерных импульсов, открыл новые подходы для изучения нелинейных оптических режимов, когда сильная связь электромагнитного излучения с веществом может привести к множеству принципиально новых возможностей преобразования частоты электромагнитной волны [1–3] и управления свойствами вещества за счет вы-

сокочастотного электромагнитного излучения [4–6]. В магнетизме это привело к созданию такой новой области исследований, как сверхбыстрый магнетизм [7–9], а также к обсуждению потенциала фемтосекундных оптических импульсов для наиболее быстрой и энергоэффективной записи данных магнитной памяти [10].

Уже первые исследования нелинейных оптических явлений в магнетиках [2, 11] выявили, что электромагнитное излучение может действовать на материал как эффективное магнитное поле [12, 13], упорядочивая спины и, тем самым, создавая намагниченность [13]. Векторное произведение двух ортогональных компонент электрического поля циркулярно поляризованного света имеет ту же симметрию, что и магнитное поле, направленное вдоль волнового вектора электромагнитной волны. Линейно поляризованный свет способен создавать магнитную анизотропию в магнитоупорядоченном материале. Феноменологически, эти эффекты описываются как обратный эффект Фарадея [14, 15] и обратный эффект Коттона – Мутона [13].

* E-mail: zvezdin.ak@phystech.edu

** E-mail: dmitry.plokhov@gmail.com

Совсем недавно было установлено, что импульсы дальнего инфракрасного диапазона (характерный диапазон частот от 300 ГГц до 3 ТГц) являются наиболее энергоэффективными для магнетизма [16, 17]. При этом, несмотря на многочисленные экспериментальные и теоретические исследования в видимом, ближнем [18–20] и среднем инфракрасном [21] диапазонах, наблюдение оптомагнитных явлений в терагерцевом диапазоне долго оставалось одной из нерешенных задач. Лишь совсем недавно появились экспериментальные доказательства существования сильных нелинейных эффектов терагерцевого излучения, воздействующего на спины в антиферромагнетиках [10, 22].

Настоящая работа посвящена теоретическому анализу экспериментов, которые показали возможность эффективного возбуждения спиновых волн в антиферромагнетике FeVO_3 за счет ультракоротких терагерцевых импульсов. Нами подробно рассматриваются уравнения нелинейной спиновой динамики. Более того, используя уравнения, полученные в работах [23, 24] и в работе [25], мы показываем, что возможность возбуждения квазиантиферромагнитной моды резонанса в FeVO_3 терагерцевым импульсом обуславливается отличием от нуля производной магнитного поля по времени. Аналогичный эффект был впервые обнаружен экспериментально в NiO [26].

В работе [27] на примере легкоплоскостного слабого ферромагнетика FeVO_3 была экспериментально изучена нелинейная оптическая связь терагерцевого электромагнитного излучения со спинами в материале без сильных спектральных особенностей в терагерцевом диапазоне спектра и без фазового перехода. Было показано, что однопериодный терагерцевый импульс, возбуждает спиновый антиферромагнитный резонанс гигагерцевого диапазона в этом антиферромагнетике, а наблюдаемые зависимости от поляризации терагерцевого импульса, температуры и внешнего магнитного поля указывают на механизм, характерный для обратного эффекта Коттона – Мутона [28–30], причем этот механизм действует в широком интервале температур. Однако в указанной работе [27] приведены лишь результаты теоретического анализа наблюдаемых явлений без достаточного их обоснования. Настоящая работа призвана заполнить этот пробел.

2. КРИСТАЛЛ БОРАТА ЖЕЛЕЗА

Первое сообщение о синтезе монокристаллов бората железа и их кристаллической структуре от-

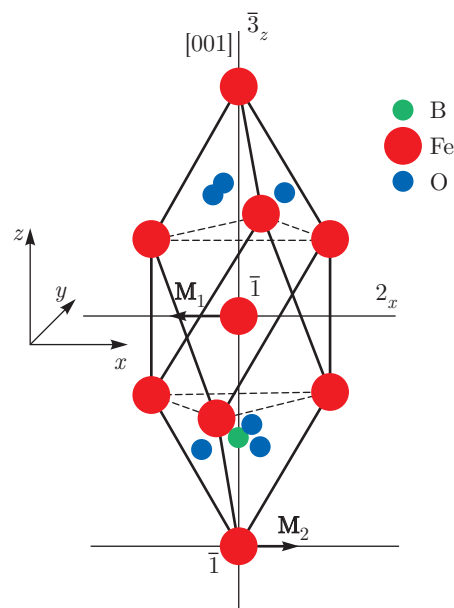


Рис. 1. (В цвете онлайн) Структура бората железа FeVO_3 . Показаны векторы магнитного момента M_1 и M_2 под решеток, а также местоположения элементов симметрии: центр симметрии $\bar{1}$, ось третьего порядка $\bar{3}_z$, ось второго порядка 2_x

носится к 1963 году [31]. Более точно структурные параметры были определены в 1975 году [32]. При описании кристаллографической структуры бората железа мы будем следовать работе [33], а при рассмотрении симметрии магнитной структуры этого слабого ферромагнетика — лекциям А. С. Боровика-Романова [34], популярным в 70-е годы, а в настоящее время представляющими собой библиографическую редкость.

Кристаллическая система бората железа FeVO_3 является тригональной, а решетка — ромбоэдрической. Точечная группа симметрии $D_{3d} \equiv \bar{3}m$ (планаксимальный кристаллографический класс), пространственная группа $D_{3d}^6 \equiv R\bar{3}c$ (такая же, как у кальцита CaCO_3 , родохрозита MnCO_3 , корунда Al_2O_3 , гематита Fe_2O_3 и других подобных соединений). В элементарной ячейке с параметрами $a = 0.5520$ нм и $\alpha = 49.54^\circ$ содержатся $Z = 2$ формульные единицы (плотность вещества 4.27 г/см³), при этом магнитная ячейка совпадает с кристаллохимической. Схематический вид кристаллической структуры приведен на рис. 1.

В табл. 1 приведены координаты атомов и их распределение по различным типам позиций в элементарной ячейке FeVO_3 , полученные с помощью рентгеноструктурного анализа [35] при учете симметричных преобразований группы D_{3d}^6 . Расстояния

Таблица 1. Координаты атомов элементарной ячейки FeVO_3 в ромбоэдрической кристаллографической системе координат, $\epsilon = 0.02981$ нм — кислородный параметр [35]

Позиция	$2a$	$2b$	$6c$
Симметрия	D_3	S_6	C_2
Атомы	V	Fe	O
Координаты	$\frac{1}{4}; \frac{1}{4}; \frac{1}{4}$	$0; 0; 0$	$\frac{1}{4} + \frac{\epsilon}{a}; \frac{1}{4} - \frac{\epsilon}{a}; \frac{1}{4}$
	$\frac{3}{4}; \frac{3}{4}; \frac{3}{4}$	$\frac{1}{2}; \frac{1}{2}; \frac{1}{2}$	$\frac{1}{4} - \frac{\epsilon}{a}; \frac{1}{4}; \frac{1}{4} + \frac{\epsilon}{a}$
			$\frac{1}{4}; \frac{1}{4} + \frac{\epsilon}{a}; \frac{1}{4} - \frac{\epsilon}{a}$

Таблица 2. Межатомные расстояния и угловые соотношения в кристаллической решетке FeVO_3 [35]

Fe–O	0.2028 нм
V–O	0.1379 нм
Fe–Fe	0.3601 нм
O–Fe–O	91.82° и 88.18°

и углы между атомами указаны в табл. 2, данные которой свидетельствуют о том, что окружение иона железа его шестью ближайшими ионами кислорода обладает почти кубической симметрией.

На рис. 2 изображены некоторые важные детали кристаллической структуры бората железа [36]:

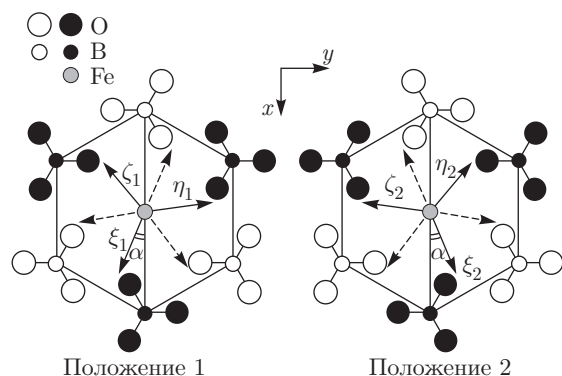


Рис. 2. Эффективные положения ионов VO_3^{3-} и кубических осей электрического поля для двух неэквивалентных положений иона Fe^{3+} в решетке FeVO_3 [36]

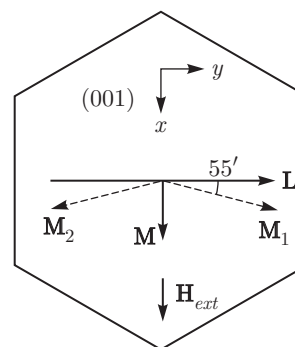


Рис. 3. Базовая плоскость (001) в кристалле бората железа FeVO_3

показаны две проекции на плоскости, проходящие через ионы железа перпендикулярно оси $\bar{3}_z$ в верхнем и нижнем их положениях в элементарной ячейке. Оси симметрии второго порядка 2_x отклоняются на угол $\alpha = 24^\circ$ [37] соответственно по и против часовой стрелки от направлений, отвечающих праструктуре, описываемой точечной группой симметрии $R\bar{3}m$. Возникающая дисторсия представляет собой по сути антивращение кислородных окружений ионов бора вокруг оси третьего порядка и может рассматриваться как конденсация соответствующей фононной моды (R_{25} в кристаллах типа перовскита [38]). Именно эта дисторсия и является причиной слабого ферромагнетизма в борате железа.

Борат железа обладает сильной анизотропией типа легкая плоскость, причем в самой базисной легкой плоскости поле анизотропии является очень малым (0.02 мТл). Нейтронографические исследования показали, что в нем реализуется антиферромагнитная структура со слабым ферромагнетизмом (температура Нееля $T_N = 348$ К [39]).

Кристаллы FeVO_3 имеют две магнитные подрешетки. Магнитные моменты M_1 и M_2 ионов железа $\text{Fe}_{(1)}^{3+}$ и $\text{Fe}_{(2)}^{3+}$ почти антипараллельны и лежат в базисной плоскости кристалла, перпендикулярной оси третьего порядка. Небольшое, обусловленное взаимодействием Дзялошинского–Мория, отклонение векторов M_1 и M_2 от антипараллельности приводит к тому, что наряду с существованием антиферромагнитного момента L отличным от нуля оказывается и слабоферромагнитный момент M , который также лежит в базисной плоскости. Угол ψ скоса магнитных моментов ионов подрешеток, связанный с существованием ферромагнетизма, равен приблизительно 55° [40].

В настоящей работе мы, чтобы пользоваться безразмерными величинами M и L , определим векторы

Таблица 3. Неприводимые представления группы $R\bar{3}m$

	M_i	L_i	$L_i L_k$
Γ_1	–	L_z	$L_x^2 + L_y^2; L_z^2$
Γ_2	M_z	–	–
Γ_3	$\begin{pmatrix} M_x \\ M_y \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} L_y \\ -L_x \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} L_x^2 - L_y^2 \\ 2L_x L_y \end{pmatrix}; \begin{pmatrix} L_z L_x \\ L_z L_y \end{pmatrix}$
	$E_i E_k$		ε_{ik}
Γ_1	$E_x^2 + E_y^2; E_z^2$		$\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}$
Γ_2	–		–
Γ_3	$\begin{pmatrix} E_x^2 - E_y^2 \\ 2E_x E_y \end{pmatrix}; \begin{pmatrix} E_z E_x \\ E_z E_y \end{pmatrix}$		$\begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy} \\ 2\varepsilon_{xy} \end{pmatrix}; \begin{pmatrix} \varepsilon_{zx} \\ \varepsilon_{zy} \end{pmatrix}$

ферромагнетизма \mathbf{M} и антиферромагнетизма \mathbf{L} следующим образом:

$$\mathbf{M} = \frac{\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2}{2M_0} \quad \text{и} \quad \mathbf{L} = \frac{\mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2}{2M_0}, \quad (1)$$

где $M_0 = 520$ Гс — намагниченность насыщения каждой из подрешеток [35]. При низких температурах ($T \ll T_N$) $M = \sin \psi \ll 1$, $L = \cos \psi \approx 1$, и при этом $\mathbf{M} \perp \mathbf{L}$. Заметим, что, несмотря на малость отношения M/L , магнитное поле 5 мТл уже достаточно для того, чтобы ориентировать вектор \mathbf{M} вдоль поля (рис. 3).

При изучении физических явлений и свойств бората железа, инвариантных по отношению к трансляциям, вместо пространственной группы D_{3d}^6 используется обычно «редуцированная» группа \tilde{D}_{3d}^6 , отличающаяся от группы D_{3d}^6 тем, что оператор трансляций считается единичным [34]. Эта группа содержит следующие генераторы: инверсия I , ось третьего порядка $\bar{3}_z$ и три оси второго порядка $\hat{2}_x$. В табл. 3 даны неприводимые представления этой группы, которые позволяют легко составлять выражения для необходимых инвариантов, отвечающих этой симметрии.

Последовательную термодинамическую теорию слабого ферромагнетизма сформулировал Дзялошинский [41], хотя уже в работах [42, 43] Боровика-Романова высказывалось предположение, что наличие слабого магнитного момента у антиферромагнетиков CoCO_3 и MnCO_3 обусловлено тем, что различные подрешетки не полностью компенсируют друг друга.

Механизмы, приводящие к появлению слабого ферромагнетизма антиферромагнетиков, принято называть взаимодействием Дзялошинского – Мория. В общем случае оно описывается членами вида $L_\alpha M_\beta$ ($\alpha, \beta = x, y, z$) или членами более высокого порядка по компонентам вектора антиферромагнетизма \mathbf{L} , но линейными по компонентам вектора намагниченности \mathbf{M} . В случае бората железа, согласно табл. 3 (см. представление Γ_3), взаимодействие Дзялошинского – Мория описывается слагаемыми типа $M_x L_y - M_y L_x$. Полный симметричный анализ инвариантов, связанных со слабым ферромагнетизмом, в различных кристаллических структурах проведен Туровым [44].

Квантовую теорию слабого ферромагнетизма развил Мория [45]. Он показал, что при учете спин-орбитального взаимодействия в схеме косвенного обмена как возмущения в магнитном гамильтониане возникают члены, антисимметричные по отношению к перестановке номеров магнитных подрешеток:

$$\mathcal{F}_d = (\mathbf{d} \cdot [\mathbf{M}_1 \times \mathbf{M}_2]), \quad (2)$$

где \mathbf{M}_1 и \mathbf{M}_2 — намагниченности подрешеток, а $\mathbf{d} \parallel 3_z$ — T -четный аксиальный вектор Дзялошинского. Слабый ферромагнетизм бората железа вызывается именно антисимметричным обменом.

Что касается бората железа FeVO_3 , то, как уже отмечалось выше, важной особенностью его кристаллической структуры является существование антивращений кислородных окружений ионов бора вокруг оси третьего порядка в двух положениях элементарной ячейки. Возникающей дисторсии можно поставить в соответствие T -четный псевдовектор $\mathbf{\Omega} = \frac{1}{2}(\mathbf{\Omega}_1 - \mathbf{\Omega}_2)$, где $\mathbf{\Omega}_1$ и $\mathbf{\Omega}_2$ характеризуют повороты на (относительно) небольшой угол 24° по и против часовой стрелки осей второго порядка в неэквивалентных положениях 1 и 2. Псевдовектор такого антивращения $\mathbf{\Omega}$ преобразуется по тем же самым неприводимым представлениям Γ_1 и Γ_3 , по которым преобразуется вектор антиферромагнетизма \mathbf{L} . Естественно считать, что при этом вектор Дзялошинского

$$\mathbf{d} = \mathbf{d}_\perp + \mathbf{d}_z = a_1 \mathbf{\Omega}_\perp + a_2 \mathbf{\Omega}_z,$$

где a_1 и a_2 — T -четные скаляры. Известный вопрос о знаке вектора Дзялошинского [46] тем самым можно формулировать как вопрос о знаке константы a_2 . Действительно, при перестановке индексов 1 и 2 магнитных подрешеток, вектор \mathbf{d} меняет знак в соответствии с приведенной выше формулой. В работе [47] показано, что в борате железа знак вектора \mathbf{d}

отрицателен. Отсюда вытекает интересная возможность изменять вектор Дзялошинского в кристаллах методами стрейнтроники или с помощью электрического тока в мультиферроиках, например, в структурно близком борату железа оксидном материале BiFeO_3 [48].

Другой важной особенностью бората железа является очень малая магнитная анизотропия в состоянии типа легкая плоскость относительно поворота магнитных моментов в этой плоскости. Она определяется инвариантами 6-го порядка по компонентам вектора антиферромагнетизма \mathbf{L} . Ввиду того что существование этой анизотропии не проявляется в эксперименте [27], мы будем ей пренебрегать, а тогда минимальный набор инвариантов можно представить в виде

$$L^2, M^2, (\mathbf{M} \cdot \mathbf{L})^2, \\ L_z^2, M_z^2, L_x M_y - L_y M_x, (\mathbf{M} \cdot \mathbf{L}) L_z M_z.$$

Верхняя строка определяет обменные инварианты, а нижняя — релятивистские, причем третий из них ответственен за слабый ферромагнетизм (антисимметричный обмен Дзялошинского — Мории).

Соответствующая плотность термодинамического потенциала с точностью до членов, квадратичных по базисным векторам, имеет следующий вид:

$$\Phi = \frac{1}{2} E M^2 + \frac{1}{2} A M_z^2 + \frac{1}{2} B L_z^2 + D_a (L_x M_y - L_y M_x) - \\ - M_x H_x - M_y H_y - M_z H_z. \quad (3)$$

Второе и третье слагаемые в (3) определяют энергию одноосной магнитной кристаллографической анизотропии второго порядка, $A \sim B$. Четвертое слагаемое описывает слабый ферромагнетизм, D_a — константа Дзялошинского, D_a . Остальные слагаемые дают вклад со стороны внешнего магнитного поля.

3. ЛАГРАНЖИАН И ФУНКЦИЯ РЭЛЕЯ

Для описания спиновой динамики бората железа воспользуемся лагранжевым формализмом. Для этого введем сферическую систему координат, полярную ось которой направим вдоль кристаллографической оси c (ось третьего порядка $\bar{3}_2$), а азимутальную ось совместим с осью второго порядка 2_x (см. рис. 1). Очевидно, в такой системе координат (пренебрегаем отличием L от единицы),

$$\mathbf{L} = (\sin \vartheta \cos \varphi, \sin \vartheta \sin \varphi, \cos \vartheta).$$

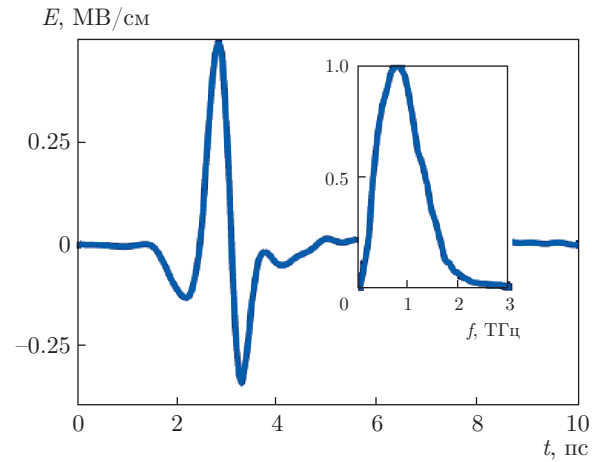


Рис. 4. Профиль терагерцевого импульса и соответствующий фурье-спектр (на вставке) [27]

Векторы напряженностей электрического \mathbf{E} и магнитного \mathbf{H} полей электромагнитной волны, распространяющейся вдоль оси z , изменяются согласно законам

$$\mathbf{E} = (\cos \alpha, \sin \alpha, 0) E(t), \\ \mathbf{H} = (-\sin \alpha, \cos \alpha, 0) H(t),$$

где угол α задает ориентацию плоскости поляризации волны, а функции $E(t)$ и $H(t)$ определяют профиль терагерцевого импульса (рис. 4). Внешнее магнитное поле \mathbf{H}_{ext} лежит в базовой плоскости

$$\mathbf{H}_{ext} = (\cos \beta, \sin \beta, 0) H_{ext}.$$

В геометрии эксперимента [27] угол $\beta = 0$.

Теория, позволяющая дать описание макроскопической динамики магнетиков без учета диссипации, была сформулирована в работе [25] на основе общих соображений симметрии. Несколько иным способом функция Лагранжа \mathcal{L} и диссипативная функция Рэля \mathcal{R} , необходимые для описания динамики антиферромагнетика, были также получены в работе [24]. Для пространственно-однородного возбуждения динамики бората железа, соответствующего обсуждаемому в настоящей работе эксперименту, во введенной системе координат (ϑ, φ) эти функции имеют достаточно простой вид:

$$\mathcal{L} = \frac{\chi_{\perp}}{2\gamma^2} (\dot{\vartheta}^2 + \dot{\varphi}^2 \sin^2 \vartheta) - \mathcal{U}(\vartheta, \varphi) \quad (4)$$

и

$$\mathcal{R} = \frac{\alpha M_0}{2\gamma} (\dot{\vartheta}^2 + \dot{\varphi}^2 \sin^2 \vartheta). \quad (5)$$

Здесь $\chi_{\perp} = M_0/H_E$ — поперечная восприимчивость антиферромагнетика, M_0 — намагниченность насы-

щения подрешетки, H_E — обменное поле ($H_E = 3000$ кЭ по данным работы [49]), γ — гиромагнитное отношение, α — безразмерная константа затухания Гильберта.

Первое слагаемое в уравнении (4) представляет собой обобщенную кинетическую энергию, а слагаемое $\mathcal{U}(\vartheta, \varphi)$ есть обобщенная потенциальная энергия (учитывающая взаимодействие между подрешетками), которую можно записать в виде

$$\mathcal{U}(\vartheta, \varphi) = U_a + U_m + U_s + U_t. \quad (6)$$

Члены U_a , U_m , U_s и U_t описывают энергии соответственно кристаллографической анизотропии, взаимодействия с эффективным магнитным полем, спин-фотонного взаимодействия и динамический вклад. Формулы (4) и (6) отличаются от аналогичных ранее опубликованных формул наличием члена U_s , определяющего энергию спин-фотонного взаимодействия с электромагнитным полем терагерцевого импульса. В данном случае речь идет об обратном эффекте Коттона–Мутона [13].

Слагаемое U_a представляет собой энергию кристаллографической анизотропии типа легкая плоскость,

$$U_a = -K_a L_z^2 = -K_a \sin^2 \vartheta.$$

Константа K_a может быть оценена, исходя из приводимого в работе [49] значения 3 кЭ (при $T \rightarrow 0$) для эффективного поля H_a одноосной анизотропии, $2K_a = H_a M_0 = 1.6 \cdot 10^6$ эрг/см³.

Слагаемое U_m в выражении (6) включает энергию взаимодействия с эффективным магнитным полем \mathbf{H}_{eff} [50],

$$U_m = -\frac{\chi_{\perp}}{2} (H_{eff}^2 - (\mathbf{H}_{eff} \cdot \mathbf{L})^2),$$

причем эффективное магнитное поле

$$\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{H}_{ext} + \mathbf{H}(t) + [\mathbf{H}_D \times \mathbf{L}],$$

где \mathbf{H}_{ext} — внешнее магнитное поле, $\mathbf{H}(t)$ — магнитное поле терагерцевого импульса, а $\mathbf{H}_D = (0, 0, H_D)$ — поле Дзялошинского (согласно [51], $H_D = 100$ кЭ при $T \rightarrow 0$). Нетрудно показать, что U_m представимо в виде

$$U_m = -M_S H_{ext} \sin \vartheta \sin(\varphi - \beta) + M_S H(t) \sin \vartheta \cos(\varphi - \alpha) - \frac{M_S^2}{2\chi_{\perp}} \sin^2 \vartheta.$$

Последнее слагаемое в этой сумме по виду совпадает со слагаемым, которое описывает энергию кристаллографической анизотропии, поэтому его можно

включить в выражение для U_a . Перенормированная за счет взаимодействия Дзялошинского константа анизотропии

$$\tilde{K}_a = K_a + \frac{M_S^2}{2\chi_{\perp}}.$$

Энергия U_s спин-фотонного взаимодействия с электрическим полем терагерцевого импульса представима в виде выражения, содержащего члены, квадратичные по компонентам вектора напряженности электрического поля и по компонентам вектора антиферромагнетизма, поскольку в линейном приближении по электрическому полю спин с полем не взаимодействует, если электромагнитная волна имеет линейную поляризацию. Если воспользоваться табл. 3 неприводимых представлений пространственной группы симметрии бората железа, то выражение для U_s можно явным образом записать в виде (см. представление Γ_3)

$$U_s = \frac{\varkappa}{4\pi} ((E_x^2 - E_y^2)(L_x^2 - L_y^2) + 4E_x E_y L_x L_y) = \frac{\varkappa}{4\pi} E^2 \sin^2 \vartheta \cos(2\varphi - 2\alpha), \quad (7)$$

где \varkappa — константа линейного магнитного двулучепреломления. При записи (7) опущено неактуальное для рассматриваемой задачи слагаемое типа $(L_x^2 + L_y^2)(E_x^2 + E_y^2)$ (см. представление Γ_1). Поскольку электрическая и магнитная компоненты терагерцевого импульса связаны между собой известной формулой, выражение (7), описывающее обратный эффект Коттона–Мутона, фактически содержит вклад обеих компонент. При этом предполагается, что константа \varkappa определяется экспериментально.

Наконец, последнее слагаемое в (6) представляет собой динамический вклад в энергию,

$$U_t = \frac{\chi_{\perp}}{\gamma} (\mathbf{H} \cdot [\mathbf{L} \times \dot{\mathbf{L}}]),$$

описывающий энергию взаимодействия магнитного поля и динамической составляющей намагниченности $\mathbf{M} = \frac{1}{\gamma} [\mathbf{L} \times \dot{\mathbf{L}}]$. В явном виде

$$U_t = \frac{\chi_{\perp} H}{\gamma} \times (\dot{\vartheta} \cos(\varphi - \alpha) - \dot{\varphi} \sin \vartheta \cos \vartheta \sin(\varphi - \alpha)). \quad (8)$$

4. СВЕРХБЫСТРАЯ СПИНОВАЯ ДИНАМИКА: КОНЦЕПЦИЯ ФОТОННОГО УДАРА

При анализе спиновой динамики антиферромагнетика под действием терагерцевого импульса необ-

ходимо рассмотреть две моды: квазиферромагнитную и квазиантиферромагнитную, которые проявляются как осцилляции угловых переменных ϑ и φ , введенных в предыдущем разделе. Эти колебания не являются свободными, они происходят под действием вынуждающего момента силы (оптический спиновый вращающий момент), полярная S_ϑ и азимутальная S_φ компоненты которого, действующие соответственно на угловые переменные ϑ и φ , можно представить в виде

$$S_\vartheta = -\frac{\partial U_s}{\partial \vartheta} = -\frac{\kappa}{4\pi} E^2 \sin 2\vartheta \cos(2\varphi - 2\alpha) \quad (9)$$

и

$$S_\varphi = -\frac{\partial U_s}{\partial \varphi} = \frac{\kappa}{2\pi} E^2 \sin^2 \vartheta \sin(2\varphi - 2\alpha). \quad (10)$$

Приведем теперь уравнения Лагранжа–Эйлера для функции Лагранжа (4) с учетом диссипативной функции Рэлея (5):

$$\ddot{\vartheta} + \frac{2}{\tau} \dot{\vartheta} + \omega_2^2 \sin \vartheta \cos \vartheta - \frac{\gamma^2}{\chi_\perp} T_\vartheta = \frac{\gamma^2}{\chi_\perp} S_\vartheta(\vartheta, \varphi, t) \quad (11)$$

и

$$\ddot{\varphi} + \frac{2}{\tau} \dot{\varphi} + \omega_1^2 \sin(\varphi - \alpha) = \frac{\gamma^2}{\chi_\perp} S_\varphi(\vartheta, \varphi, t). \quad (12)$$

В уравнениях (11) и (12) введены следующие обозначения: $2/\tau = \alpha\omega_E$, где $\omega_E = \gamma H_E$, а константа затухания $\alpha = 0.1$ [27]; $\omega_2^2 = \omega_E \omega_A$, где $\omega_A = 2\gamma \tilde{K}_a/M_0$; $\omega_1^2 = \gamma H \omega_E$,

$$T_\vartheta = \frac{\chi_\perp}{\gamma} \frac{\partial}{\partial \vartheta} \left(\mathbf{H}(t) \cdot [\mathbf{L} \times \dot{\mathbf{L}}] \right).$$

Уравнения, подобные (11) и (12), впервые были получены в работе [23] при изучении сверхбыстрой динамики доменных границ в иттриевом ортоферрите YFeO_3 и широко использовались в работах Барьяхтара с сотрудниками, см., например, известный обзор [52].

Минимум потенциальной энергии $U_a + U_m$ в отсутствие электромагнитной волны реализуется при $\vartheta = \pi/2$ и $\varphi = \pi/2$ (угол $\beta = 0$ в геометрии эксперимента [27]). Нетрудно убедиться, что для основного состояния полярный оптический спиновый вращающий момент обращается в нуль, т.е. $S_\vartheta = 0$, но азимутальный оптический спиновый вращающий момент при этом нулю не равен:

$$S_\varphi = -\frac{\kappa}{2\pi} E^2 \sin 2\alpha \neq 0. \quad (13)$$

4.1. Квазиферромагнитная мода

Нелинейные уравнения (11) и (12) могут быть использованы для описания нелинейной динамики спинов под действием терагерцевого импульса. Например, подобные уравнения были с успехом применены для моделирования процессов переключения между различными состояниями в антиферромагнетике TmFeO_3 [17]. Экспериментальное изучение спиновой динамики в борате железа было ограничено исследованием малых осцилляций, поэтому мы будем рассматривать малые отклонения ϑ_1 и φ_1 угловых переменных ϑ и φ от равновесных значений:

$$\vartheta_1 = \vartheta - \frac{\pi}{2}, \quad \varphi_1 = \varphi - \frac{\pi}{2}.$$

Запишем сначала линеаризованное уравнение Лагранжа–Эйлера (12) для переменной φ_1 :

$$\ddot{\varphi}_1 + \frac{2}{\tau} \dot{\varphi}_1 + \omega_1^2 \varphi_1 = \frac{\gamma^2}{\chi_\perp} S_\varphi. \quad (14)$$

Длительность $\Delta t \sim 1$ пс однопериодного терагерцевого импульса мала по сравнению с периодом собственных колебаний спинов рассматриваемой системы. Это означает, что оптический вращающий момент S_φ действует лишь в течение очень короткого времени, совершая работу над системой и передавая ей некоторый момент количества движения, а также сообщая некоторый запас кинетической энергии, но не успевая при этом сколь-нибудь заметным образом вывести систему из положения равновесия. По истечении времени Δt система начинает совершать свободные затухающие квазигармонические колебания.

Данная ситуация напоминает известное в механике явление удара, т.е. явления, при котором за очень малый промежуток времени скорость тела изменяется на конечную величину при неизменном положении тела. Используя эту аналогию, рассмотренный нами механизм возбуждения квазиферромагнитной моды спиновой динамики посредством одноволнового терагерцевого импульса (сверхкороткого оптического импульса) мы можем назвать фотонным ударом.

Математически сказанное выше означает, что на протяжении малого времени Δt оптический вращающий момент формирует начальные условия для дальнейшего этапа движения динамической системы при $t > \Delta t$. Ясно, что $\varphi_1(0+) = 0$. Начальную угловую скорость $\dot{\varphi}_1(0+)$ можно определить, проинтегрировав уравнение (14) по времени, при этом удерживая члены, не обращающиеся в нуль при $\Delta t \rightarrow 0$:

$$\dot{\varphi}_1(0+) = A\omega_1,$$

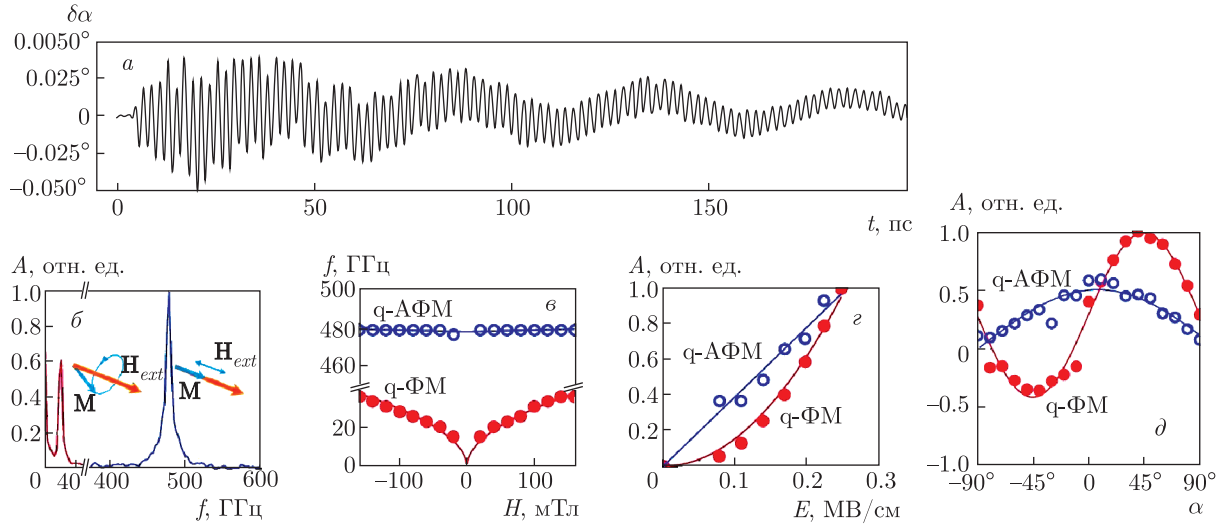


Рис. 5. Индуцированная терагерцевым импульсом спиновая динамика в борате железа [27]: зависимость угла $\delta\alpha$ поворота плоскости поляризации от времени t при $B_{ext} = 40$ мТл, $T = 6$ К (а) и соответствующий фурье-спектр (б), а также зависимости частот наблюдаемых квазиферромагнитной (q-ФМ) и квазиантиферромагнитной (q-АФМ) мод от величины внешнего магнитного поля H (в) и амплитуд A наблюдаемых мод от величины электрического поля E терагерцевого импульса (з) и от угла α , задающего плоскость поляризации падающего терагерцевого импульса (д) (сплошными линиями показаны соответствующие зависимости, полученные теоретически)

где

$$A = \frac{\tau}{\sqrt{1 + (\omega_1\tau)^2}} \frac{\gamma^2 \kappa}{2\pi\chi_{\perp}} \sin 2\alpha \int_0^{\Delta t} E^2(t) dt. \quad (15)$$

Решением уравнения (14) при полученных начальных условиях является функция

$$\varphi_1(t > \Delta t) = A \sin(\omega_1 t) \exp(-t/\tau).$$

Очевиден физический смысл величины A как амплитуды квазиферромагнитной моды.

4.2. Квазиантиферромагнитная мода

Механизм фотонного удара не применим для объяснения возбуждения квазиантиферромагнитной моды в динамике бората железа, поскольку, как было показано выше, полярная компонента S_{ϑ} оптического вращающего момента обращается в нуль. При рассмотрении квазиантиферромагнитной моды спиновой динамики под действием терагерцевого импульса необходимо учесть динамический вклад в энергию, см. (8), и соответствующий оптический вращающий момент.

Так же как и в разд. 4.1, рассмотрим малый выход системы из основного состояния. В этом приближении динамический вклад в лагранжиан антифер-

ромагнетика, как следует из выражения (8), можно с точностью до полной производной по времени представить в виде

$$\Delta\mathcal{L}_T = -\frac{\chi_{\perp}}{\gamma} \dot{H}(t) \vartheta_1 \sin \alpha,$$

откуда следует, что полярная компонента S_{ϑ} оптического вращающего момента приобретает ненулевой вклад

$$T_{\vartheta} = \frac{\chi_{\perp}}{\gamma} \dot{H}_t \sin \alpha. \quad (16)$$

Соответствующее уравнение движения для величины $\vartheta_1 = \vartheta - \pi/2$ принимает следующий вид:

$$\ddot{\vartheta}_1 + \frac{2}{\tau} \dot{\vartheta}_1 + \omega_2^2 \vartheta_1 = \gamma \dot{H}(t) \sin \alpha. \quad (17)$$

Наличие динамического вращающего момента T_{ϑ} (16) приводит к обычному возбуждению в борате железа антиферромагнитного резонанса на частоте порядка 0.5 ТГц. Однако необходимо подчеркнуть, что спиновый вращающий момент T_{ϑ} , возбуждающий квазиантиферромагнитную моду в спиновой динамике антиферромагнетика, пропорционален скорости изменения магнитного поля. Такой эффект был предсказан и теоретически изучен [23, 24], а экспериментально исследован в антиферромагнетике NiO [26].

5. СРАВНЕНИЕ С ЭКСПЕРИМЕНТОМ И ЗАКЛЮЧИТЕЛЬНЫЕ ЗАМЕЧАНИЯ

На рис. 5 приведены полученные экспериментальные данные [27], касающиеся спиновой динамики бората железа под действием терагерцевого импульса. Полученные нами уравнения позволяют объяснить наблюдаемые особенности возбуждаемых квазиферромагнитной и квазиантиферромагнитной мод в динамике бората железа.

Эти особенности сводятся к следующим.

1. Ясно видны возбуждаемые высокочастотная (480 ГГц) квазиантиферромагнитная и низкочастотная (20 ГГц при $B_{ext} = 40$ мТ) квазиферромагнитная моды магнитного резонанса, как на временной зависимости (рис. 5а), так и на соответствующем фурье-спектре (рис. 5б).

2. Частота ω_2 квазиантиферромагнитной моды от величины внешнего магнитного поля не зависит (рис. 5в), в то время как квадрат частоты ω_1 квазиферромагнитной моды прямо пропорционален величине внешнего магнитного поля, что следует из решения (14) и соответствует экспериментальным данным (рис. 5в).

3. Амплитуда квазиантиферромагнитной моды прямо пропорциональна величине электрического поля терагерцевого импульса (рис. 5з), но амплитуда квазиферромагнитной моды прямо пропорциональна квадрату величины электрического поля терагерцевого импульса (рис. 5з) в соответствии с уравнением (13).

Согласно развиваемой в настоящей работе теории, амплитуды квазиантиферромагнитной и антиферромагнитной резонансных мод должны быть пропорциональными соответственно $\sin \alpha$ и $-\sin 2\alpha$. Следует иметь в виду, что в эксперименте [27] положение плоскости поляризации терагерцевого импульса определяется углом α' между вектором напряженности электрического поля \mathbf{E}_0 импульса и координатной осью y , тем самым соответствующие амплитуды резонансных мод пропорциональны $\cos \alpha'$ и $\sin 2\alpha'$. Первая зависимость наблюдается в эксперименте точно (рис. 5д), однако вторая лишь приближенно, $A_1 \sim a + b \sin 2\alpha'$ ($a/b < 0.3$), хотя и близко к предсказываемой зависимости.

По отношению к предсказываемой и наблюдаемой амплитуде квазиантиферромагнитной моды имеется согласие с механизмом резонансного возбуждения этой моды посредством терагерцевого импульса и обнаружения этой моды с помощью магнитооптических эффектов [16].

Вместе с тем соответствующая зависимость для амплитуды квазиферромагнитной моды существенно отличается от ожидаемой, предполагаемой из рассмотрения механизмов терагерцевого возбуждения спинового резонанса. Наблюдаемая зависимость указывает на то, что поляризационно-обусловленный механизм играет доминирующую роль в возбуждении квазиферромагнитной моды спинового резонанса. Независимое от поляризации возбуждение спиновых колебаний типично для многих различных механизмов оптического управления магнетизмом [53], но зависимость типа $\sin 2\alpha$ характерна для обратного эффекта Коттона – Мутона, описанного ранее для FeVO_3 в области ближнего инфракрасного диапазона [54]. Существенно разные поляризационные зависимости показывают, что резонансно-возбужденный магнитный дипольный режим квазиантиферромагнитной моды не играет никакой роли в нелинейном механизме возбуждения квазиферромагнитной моды. Поэтому разумно предположить, что нелинейный механизм должен опираться на нерезонансное возбуждение электродипольных переходов вне спектра терагерцевого импульса.

Итак, в настоящей работе мы продемонстрировали, что интенсивные терагерцевые импульсы возбуждают спиновые колебания, соответствующие двум модам антиферромагнитного резонанса в FeVO_3 . Квазиантиферромагнитная мода резонансно возбуждается магнитным полем терагерцевого импульса, а квазиферромагнитная мода возбуждается нерезонансно, и ее амплитуда квадратично зависит от напряженности электрического поля импульса. Механизм возбуждения обладает всеми особенностями обратного магнитооптического эффекта Коттона – Мутона.

В настоящей работе мы обсуждаем данные явления только для FeVO_3 , но анализ симметрии дает основания считать, что соответствующие члены в энергии взаимодействия света и вещества не ограничены конкретной кристаллической точечной группой. Подобно прямому эффекту Коттона – Мутона, обратный эффект должен быть разрешен в материалах и других симметриях. Механизм эффекта действует в широком диапазоне температур, и мы ожидаем, что аналогичные нелинейные эффекты будут обнаружены в других магнитоупорядоченных средах. На наш взгляд, настоящая работа открывает ранее неизученные возможности для изучения явления управления спиновыми состояниями в магнитоупорядоченных материалах с помощью терагерцевых импульсов.

Благодарности. Мы выражаем свою искреннюю благодарность Е. А. Машковичу, К. А. Гришунину, Р. В. Михайловскому, Р. В. Писареву, М. Б. Стругацкому, Р. С. М. Christianen, Th. Rasing, S. Schlauderer, C. Lange, S. Baierl, R. Huber, T. Ebnet, C. P. Schmid, D. C. Valovcin за обсуждение проблем магнетизма в терагерцевом диапазоне.

Финансирование. Настоящая работа была выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 18-02-00994).

ЛИТЕРАТУРА

1. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).
2. N. Bloembergen, *Science* **216**, 1057 (1982).
3. R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, Academic Press, New York (2008).
4. F. S. Chen, J. T. LaMacchia, and D. B. Fraser, *Appl. Phys. Lett.* **13**, 223 (1968).
5. V. M. Fridkin, *Photoferroelectrics*, Springer, Berlin (1979).
6. В. Ф. Коваленко, Э. Л. Нагаев, *УФН* **148**, 561 (1986).
7. E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
8. A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov, and T. Rasing, *Nature* **435**, 655 (2005).
9. A. Kirilyuk, A. V. Kimel, and T. Rasing, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2731 (2010).
10. A. V. Kimel and M. Li, *Nature Rev. Mater.* **4**, 189 (2019).
11. Y. R.-Shen, *The principles of Nonlinear Optics*, Wiley, New York (1984).
12. J. P. van der Ziel, P. S. Pershan, and L. D. Malmstrom, *Phys. Rev. Lett.* **15**, 190 (1965).
13. Б. А. Зон, В. Я. Купершмидт, Г. В. Пахомов, Т. Т. Уразбаев, *Письма в ЖЭТФ* **45**, 219 (1987).
14. Л. П. Питаевский, *ЖЭТФ* **39**, 1450 (1961).
15. P. S. Pershan, *Phys. Rev.* **130**, 919 (1963).
16. T. Kampfrath, A. Sell, G. Klatt, A. Pashkin, S. Mährlein, T. Dekorsy, M. Wolf, M. Fiebig, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Nature Photon.* **5**, 31 (2011).
17. S. Schlauderer, C. Lange, S. Baierl, T. Ebnet, C. P. Schmid, D. C. Valovcin, A. K. Zvezdin, A. V. Kimel, R. V. Mikhaylovskiy, and R. Huber, *Nature* **569**, 383 (2019).
18. T. Satoh, Y. Terui, R. Moriya, B. A. Ivanov, K. Ando, E. Saitoh, T. Shimura, and K. Kuroda, *Nature Photon.* **6**, 662 (2012).
19. J. A. De Jong, I. Razdolski, A. M. Kalashnikova, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov, A. Kirilyuk, T. Rasing, and A. V. Kimel, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 157601 (2012).
20. D. Afanasiev, B. A. Ivanov, A. Kirilyuk, T. Rasing, R. V. Pisarev, and A. V. Kimel, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 097401 (2016).
21. T. F. Nova, A. Cartella, A. Cantaluppi, M. Först, D. Bossini, R. V. Mikhaylovskiy, A. V. Kimel, R. Merlin, and A. Cavalleri, *Nature Phys.* **13**, 132 (2017).
22. S. Baierl, M. Hohenleutner, T. Kampfrath, A. K. Zvezdin, A. V. Kimel, R. Huber, and R. V. Mikhaylovskiy, *Nature Photon.* **10**, 715 (2016).
23. А. К. Звездин, *Письма в ЖЭТФ* **29**, 605 (1979).
24. А. К. Звездин, А. А. Мухин, *Кр. сообщ. по физ. ФИАН № 12*, 10 (1981).
25. А. Ф. Андреев, В. И. Марченко, *УФН* **130**, 39 (1980).
26. T. Satoh, S.-J. Cho, R. Iida, T. Shimura, K. Kuroda, H. Ueda, Y. Ueda, B. A. Ivanov, F. Nori, and M. Fiebig, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 077402 (2010).
27. E. A. Mashkovich, K. A. Grishunin, R. V. Mikhaylovskiy, A. K. Zvezdin, R. V. Pisarev, M. B. Strugatskiy, P. C. M. Christianen, Th. Rasing, and A. V. Kimel, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 157202 (2019).
28. V. N. Gridnev, *Phys. Rev. B* **77**, 094426 (2008).
29. A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, R. V. Pisarev, V. N. Gridnev, P. A. Usachev, A. Kirilyuk, and T. Rasing, *Phys. Rev. B* **78**, 104301 (2008).
30. D. Bossini, A. M. Kalashnikova, R. V. Pisarev, T. Rasing, and A. V. Kimel, *Phys. Rev. B* **89**, 060405 (R) (2014).
31. L. Bernal, C. W. Struck, and T. G. Whitte, *Acta Cryst.* **16**, 849 (1963).
32. R. Diehl, *Sol. St. Comm.* **17**, 743 (1975).
33. М. Б. Стругацкий, *Дисс... доктора физ.-математ. наук, Таврический национальный университет им. М. В. Вернадского, Симферополь* (2008).

34. А. С. Боровик-Романов, *Лекции по низкотемпературному магнетизму: магнитная симметрия антиферромагнетиков*, Изд-во Новосибирского ун-та, Новосибирск (1976). Текст этих лекций доступен на сайте Института физических проблем им. П. Л. Капицы РАН, см. www.kapitza.ras.ru/chair/books/borovik.pdf
35. R. Diehl, W. Tantz, B. I. Nolang, and W. Wetling, *Current Topics in Materials Science* **11**, 241 (1984).
36. С. Г. Овчинников, В. В. Руденко, А. М. Воротынов, *ЖЭТФ* **155**, 514 (2019).
37. С. Н. Лукин, В. В. Руденко, В. Н. Селезнев, Г. А. Цинцадзе, *ФТТ* **22**, 51 (1980).
38. В. И. Зиненко, М. С. Павловский, *Письма в ЖЭТФ* **87**, 338 (2008).
39. M. Pernet, D. Elmale, and J.-C. Joubert, *Sol. St. Comm.* **8**, 1583 (1970).
40. М. П. Петров, Г. А. Смоленский, А. Г. Паугурт, С. А. Кижаяев, М. К. Чижов, *ФТТ* **14**, 109 (1972).
41. И. Е. Дзялошинский, *ЖЭТФ* **32**, 1547 (1957).
42. А. С. Боровик-Романов, М. П. Орлова, *ЖЭТФ* **31**, 579 (1956).
43. А. С. Боровик-Романов, *ЖЭТФ* **36**, 766 (1959).
44. Е. А. Туров, *Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов*, Изд-во Института физики металлов АН СССР, Москва (1963).
45. T. Moriya, *Phys. Rev.* **120**, 91 (1960).
46. В. И. Ожогин, С. С. Якимов, Р. А. Восканян, В. Я. Гамлицкий, *Письма в ЖЭТФ* **8**, 256 (1968).
47. V. E. Dmitienko, E. N. Ovchinnikova, S. P. Collins, G. Nisbet, G. Beutier, Y. O. Kvashnin, V. V. Mazurenko, A. I. Lichtenstein, and M. I. Katsnelson, *Nature Phys.* **10**, 202 (2014).
48. A. F. Popkov, M. D. Davydova, K. A. Zvezdin, S. V. Solov'yov, A. K. Zvezdin, *Phys. Rev. B* **93**, 094435 (2016).
49. Л. В. Великов, А. С. Прохоров, Е. Г. Рудашевский, В. Н. Селезнев, *Письма в ЖЭТФ* **15**, 722 (1972).
50. К. П. Белов, А. К. Звездин, А. М. Кадомцева, Р. З. Левитин, *Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках*, Наука, Москва (1979).
51. Л. В. Великов, А. С. Прохоров, Е. Г. Рудашевский, В. Н. Селезнев, *ЖЭТФ* **66**, 1847 (1974).
52. В. Г. Барьяхтар, Б. А. Иванов, М. В. Чёткин, *УФН* **146**, 417 (1985).
53. D. Afanasiev, I. Razdolski, K. M. Skibinsky, D. Bolotin, S. V. Yagupov, M. B. Strugatsky, A. Kirilyuk, T. Rasing, and A. V. Kimel, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 147403 (2014).
54. А. М. Kalashnikova, А. V. Kimel, R. V. Pisarev, V. N. Gridnev, A. Kirilyuk, and T. Rasing, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 167205 (2007).