

Гигантское параметрическое усиление обратного эффекта Коттона–Мутона в антиферромагнитных кристаллах

А. К. Звездин^{a,b,c,1)}, Р. М. Дубровин^{d,e,1)}, А. В. Кимель^f

^aИнститут общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

^bФизический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^cООО “Новые спинтронные технологии”, 121205 Москва, Россия

^dФизико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 С.-Петербург, Россия

^eНижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского, 603022 Н. Новгород, Россия

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

Поступила в редакцию 11 декабря 2023 г.

После переработки 19 января 2024 г.

Принята к публикации 22 января 2024 г.

В работе проведен теоретический анализ взаимодействия света со спинами в гейзенберговском антиферромагнетике с пренебрежимо малой магнитной анизотропией, как в случае RbMnF_3 . В частности, проведено моделирование эксперимента оптической накачки и зондирования, где под действием коротких лазерных импульсов накачки в антиферромагнетике возбуждаются когерентные терагерцовые магноны, которые детектируются задержанным во времени относительно импульса накачки импульсом зондирования. Показано, что вблизи параметрического резонанса, т.е. в области параметрической неустойчивости, происходит гигантское усиление интенсивности возбуждения терагерцовых магнонов под влиянием обратного эффекта Коттона–Мутона.

DOI: 10.31857/S1234567824050069, EDN: FKYCAE

1. Введение. Эффективная генерация когерентных спиновых волн в антиферромагнетиках является актуальной задачей для современной спинтроники и магноники. Короткие лазерные импульсы, длительностью около 100 фс и менее, являются одним из наиболее эффективных способов генерации когерентных магнонов в широком диапазоне частот от гигагерц до терагерц. Наиболее универсальный механизм возбуждения когерентных магнонов лазерными импульсами основан на обратных магнитооптических (оптомагнитных) эффектах Фарадея и Коттона–Мутона, где поляризованный импульс света создает в магнетике импульс эффективного магнитного поля и таким образом индуцирует однородные спиновые осцилляции, которые соответствуют когерентным магнонам в центре зоны Бриллюэна [1]. Максимальная частота магнона, который может возбуждаться благодаря этим механизмам, равна максимально возможной разнице частот в Фурье спектре импульса эффективного магнитного поля.

Параметрическое возбуждение магнонов – принципиально иной механизм. При параметрическом

возбуждении накачка с частотой ω_p возбуждает моды с половинной частотой $\omega_p/2$. Такое возбуждение является достаточно эффективным механизмом генерации когерентных магнонов [2, 3] и фононов [4–6], а также “тихих” (*silent*) фононов, которые иначе не взаимодействуют со светом [7]. Теория параметрических эффектов в ферромагнетиках разработана достаточно подробно [8–12]. Параметрическому возбуждению спиновых волн в антиферромагнетиках также был посвящен ряд работ [2, 13–18]. Интересно, что условие параметрической накачки позволяет парами возбуждать магноны с не равными нулю, но противоположными по знаку волновыми векторами. В результате, в отличие от оптомагнитных эффектов Фарадея и Коттона–Мутона, параметрическая накачка позволяет возбуждать неоднородные спиновые осцилляции, которые соответствуют когерентным магнонам в глубине зоны Бриллюэна.

Возможность возбуждать когерентные магноны с ненулевым волновым вектором может привести к существенным отличиям в описании спиновой динамики. Обычно, антиферромагнетик описывается как два антиферромагнитно связанных ферромагнети-

¹⁾e-mail: zvezdin@gmail.com; dubrovin@mail.ioffe.ru

ка с намагниченностями \mathbf{M}_1 и \mathbf{M}_2 . Тогда магнитный порядок можно описать используя антиферромагнитный вектор $\mathbf{L} = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2$ и намагниченность $\mathbf{M} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2$ ($\mathbf{M} = 0$). Спиновая динамика, которая соответствует магнонам в центре зоны Бриллюэна и имеет малую амплитуду, успешно описывается в терминах \mathbf{L} в приближении $|\mathbf{L}| = \text{const}$. Увеличение волнового вектора увеличивает частоту предельно возможных спиновых осцилляций, которые определяются величиной обменного взаимодействия. Модуляция обменного взаимодействия электрическим полем лазерного импульса обеспечивает условия параметрической неустойчивости, тогда как обратный эффект Коттона–Мутона создает внешний вращающий момент, действующий на спины, который приводит к скосу магнитных подрешеток \mathbf{M}_1 и \mathbf{M}_2 из положения равновесия. Это означает, что $|\mathbf{L}|$ больше нельзя считать постоянной величиной. При этом (т.е. при $|\mathbf{L}| \neq \text{const}$) размерность системы нелинейных уравнений спиновой динамики антиферромагнетика увеличивается в два раза: с 3 до 6 или с 2 до 4 при использовании сферических координат. Таким образом, эта работа посвящена теоретическому анализу спиновой динамики с $|\mathbf{L}| \neq \text{const}$, которая индуцируется коротким лазерным импульсом в результате параметрического возбуждения магнонов с волновым вектором, отличным от нуля.

2. Двухподрешеточный гейзенберговский антиферромагнетик. Рассмотрим двухподрешеточный антиферромагнитный кристалл кубической симметрии (точечная группа $m\bar{3}m$), основной гамильтониан которого можно представить в виде

$$H_0 = J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + K \sum_i (S_y^2 S_z^2 + S_x^2 S_z^2 + S_x^2 S_y^2), \quad (1)$$

где $J > 0$ – энергия обменного взаимодействия, $K < 0$ – энергия магнитной анизотропии, которая в случае RbMnF_3 пренебрежимо мала [19], S – спин (для RbMnF_3 $S = 5/2$).

В сферической системе координат намагниченности подрешеток антиферромагнетика определяются как $\mathbf{M}_i = M(\sin \vartheta_i \cos \varphi_i, \sin \vartheta_i \sin \varphi_i, \cos \vartheta_i)$ где $i = 1, 2$ обозначают противоположно направленные магнитные подрешетки, $\vartheta \in [0, \pi]$ – полярный угол, отсчитываемый от оси z , а $\varphi \in [0, 2\pi]$ – азимутальный угол в плоскости xy , отсчитываемый от оси x , как показано на рис. 1а. Минимизация гамильтониана (1) определяет основное состояние, для которого сферические углы имеют значения $\vartheta_1^{(0)} = \arccos(1/\sqrt{3})$, $\vartheta_2^{(0)} = \pi - \arccos(1/\sqrt{3})$ и $\varphi_1^{(0)} = \pi/4$, $\varphi_2^{(0)} = 3\pi/4$.

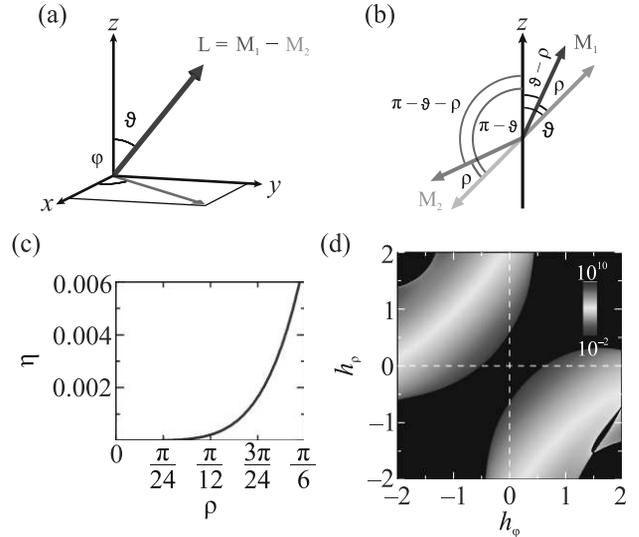


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Антиферромагнитный вектор \mathbf{L} направленный вдоль оси $[111]$ в сферической системе координат, и его проекция на плоскость xy . (б) – Скос противоположно направленных намагниченностей подрешеток $\mathbf{M}_{1,2}$ (canting) под углом ρ относительно оси z . (с) – Зависимость коэффициента ортогональности $\eta = |\langle \mathbf{n}_j \mathbf{n}_{j+\delta} \rangle| = \left| \left(\frac{-\rho^2 - \beta^2 \sin^2 \vartheta}{2} \right)^S \right| \ll 1$ от угла скоса подрешеток ρ при $\beta = 0$. (д) – Цветовая карта, показывающая параметрическое усиление обратного эффекта Коттона–Мутона в зависимости от параметрических коэффициентов h_φ и h_ρ системы уравнений (12). Граница черной области соответствует порогу параметрической неустойчивости

3. Светоиндуцированная спиновая динамика в терминах спиновых корреляторов.

В неравновесном состоянии под действием коротких лазерных импульсов, распространяющихся в антиферромагнитном кристалле вдоль оси z , $\mathbf{E} = E_0(\cos \alpha, \sin \alpha, 0)$, где α – угол в плоскости xy относительно оси x , коллинеарные намагниченности подрешеток скашиваются в результате динамической модуляции обменного взаимодействия электрическим полем волны. Далее мы будем рассматривать углы подрешеток

$$\begin{aligned} \vartheta_1 &= \vartheta - \rho, \\ \vartheta_2 &= \pi - \vartheta - \rho, \\ \varphi_1 &= \varphi + \beta, \\ \varphi_2 &= \varphi + \pi - \beta, \end{aligned} \quad (2)$$

скошенные на небольшие углы $\rho \ll 1$ и $\beta \ll 1$. Ниже будет показано, что эллиптичность, наведенная импульсом накачки, чувствительна только к углу ρ , который показан на рис. 1б.

Для описания спиновой динамики нам потребуется энергия взаимодействия магнитной подсистемы антиферромагнетика с электрическим полем лазерного импульса (речь идет о рамановском процессе). Эта энергия входит в лагранжиан системы (см. ниже) и может быть представлена в виде:

$$U_{sp}(\vartheta, \varphi, \rho, \beta) = \sum_i' \sum_{\delta=1}^6 \chi_{nmkl} E_n^{(1)} E_m^{(2)} \langle S_k^i S_l^{i+\delta} \rangle, \quad (3)$$

где суммирование проводится по всем магнитным узлам (i) и ближайшим соседям (δ). Тензор четвертого ранга χ_{nmkl} для кубической симметрии ($m\bar{3}m$) определяется только тремя ненулевыми параметрами $a_1 = \chi_{11} = \chi_{22} = \chi_{33}$, $a_2 = \chi_{12} = \chi_{21} = \chi_{13} = \chi_{31} = \chi_{23} = \chi_{32}$ и $a_3 = \chi_{44} = \chi_{55} = \chi_{66}$, где использована сокращенная запись индексов тензора. $\mathbf{E}^{(1)}(t)$ и $\mathbf{E}^{(2)}(t)$ – электрические поля сверхбыстрых лазерных импульсов, лежащие в плоскости xy , с частотами, соответственно ω_1 и ω_2 , разность которых $\omega_p = \omega_1 - \omega_2$ находится в параметрическом резонансе с частотами спиновой динамики.

Для вычисления спиновых корреляторов в выражении (3) мы будем использовать метод спиновых когерентных состояний (SCS – *spin coherent states*) [20]:

$$\langle S_k^i S_l^{i+\delta} \rangle = S^2 \langle n_k^i n_l^{i+\delta} \rangle, \quad (4)$$

где $|\mathbf{n}\rangle = e^{i\vartheta(\mathbf{n}\times z)} |z\rangle = (1 + |\mu|^2)^{-1/2} e^{\mu_j S_j} |z\rangle$, а $\mu = e^{i\varphi} \tan \frac{\vartheta}{2}$. Известно, что спиновые когерентные состояния $|\mathbf{n}_1\rangle$ и $|\mathbf{n}_2\rangle$ неортогональны и $\langle \mathbf{n}_1 | \mathbf{n}_2 \rangle = \left(\frac{1 + \mathbf{n}_1 \mathbf{n}_2}{2} \right)^S$ и это создает трудности при вычислениях матричных элементов. Однако в нашем случае $\eta = |\langle \mathbf{n}_j | \mathbf{n}_{j+\delta} \rangle| = \left| \left(\frac{-\rho^2 - \beta^2 \sin^2 \vartheta}{2} \right)^S \right| \ll 1$, при малых углах $\rho, \beta \ll 1$, как показано на рис. 1с для случая $\beta = 0$. Важно, что для вычисления обменного вклада в U_{sp} (ур. (3)) нужны только матричные элементы для ближайших соседей i и $i + \delta$. Для иллюстрации приведем пару матричных элементов для актуальных корреляторов $\langle S_i^x S_{i+\delta}^x \rangle, \langle S_i^x S_{i+\delta}^y \rangle$:

$$\begin{aligned} & \langle \mathbf{n}_i, \mathbf{n}_{i+\delta} | n_i^y n_{i+\delta}^y | \mathbf{n}_i, \mathbf{n}_{i+\delta} \rangle = \\ & -S^2 \sin(\vartheta_i - \rho_i) \sin(\vartheta_{i+\delta} + \rho_{i+\delta}) \times \\ & \times \sin(\varphi_i + \beta_i) \sin(\varphi_{i+\delta} - \beta_{i+\delta}), \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} & \langle \mathbf{n}_i, \mathbf{n}_{i+\delta} | n_i^x n_{i+\delta}^y + n_i^y n_{i+\delta}^x | \mathbf{n}_i, \mathbf{n}_{i+\delta} \rangle = \\ & -S^2 \sin(\vartheta_i - \rho_i) \sin(\vartheta_{i+\delta} + \rho_{i+\delta}) \sin 2\varphi_i. \end{aligned}$$

4. Лагранжиан. Для описания спиновой динамики рассматриваемого антиферромагнетика ис-

пользуется следующий Лагранжиан (для наглядности он представлен здесь в узельном представлении)

$$\mathcal{L}(\varphi_1, \vartheta_1, \rho, \beta) = T_{WZ} - U, \quad (6)$$

где

$$\begin{aligned} T_{WZ} &= -S\hbar \sum_{i=1}^N \sin \vartheta_0 (\rho_i \dot{\varphi}_{1i} + \beta_i \dot{\vartheta}_{1i}) = \frac{-S\hbar \sin \vartheta_0}{2N} \times \\ & \times \sum_{\mathbf{k}} (\rho_{\mathbf{k}} \dot{\varphi}_{1,-\mathbf{k}} + \beta_{\mathbf{k}} \dot{\vartheta}_{1,-\mathbf{k}} + \rho_{-\mathbf{k}} \dot{\varphi}_{1,\mathbf{k}} + \beta_{-\mathbf{k}} \dot{\vartheta}_{1,\mathbf{k}}), \end{aligned} \quad (7)$$

а

$$U = U_{ex} + U_A + \Delta U_{ex}^{sp}. \quad (8)$$

В квантовой механике кинетическая энергия спиновой системы (Весса–Зумино фактор) определяется как фаза Берри: $\gamma_B = \sum_{i=1}^2 \mathbf{A}_i \dot{\mathbf{n}}_i$, где \mathbf{A}_i – векторный потенциал Берри (Berry connection), который хотя и не является калибровочно инвариантным, но сама фаза Берри калибровочно инвариантна [21].²⁾ Мы используем хорошо известную калибровку, в которой $\mathbf{A}_i \dot{\mathbf{n}}_i = (1 - \cos \vartheta_i) \dot{\varphi}_i$. Подставляя в эту формулу значения ϑ_i и φ_i из уравнений (2) получаем в первом приближении по ρ и β выражение (7) для кинетической энергии антиферромагнетика.

Если в лагранжиане (6) опустить ΔU_{ex}^{sp} , то оптимизация по ρ и β определяет известную формулу для кинетической энергии антиферромагнетика

$T = \frac{\chi_{\perp}}{2\gamma^2} \left(\frac{d\mathbf{l}}{dt} \right)^2$, где \mathbf{l} – нормированный на единицу антиферромагнитный вектор \mathbf{L} , а χ_{\perp} – перпендикулярная восприимчивость антиферромагнетика. Она совпадает с известной формулой Андреева и Марченко для кинетической энергии антиферромагнетика [23].³⁾

Уравнения спиновой динамики с таким слагаемым, описывающем кинетическую энергию и $\Delta U_{ex}^{sp} = 0$ весьма близки к уравнению математического маятника. Включение в модель слагаемого ΔU_{ex}^{sp} вносит в нее интригующие черты знаменитой задачи о математическом маятнике с вибрирующей точкой подвеса, обладающей весьма разнообразными бифуркациями, неустойчивостями и фазовыми переходами.

Формулы для U_{ex} , U_A и ΔU_{ex}^{sp} получаются из (1) и (3) усреднением по основному состоянию гамильтониана с учетом выше приведенного замечания

²⁾См. также [22] для случая двухподрешеточного антиферромагнетика, но без U_{sp} .

³⁾См. также работу [24], где дан подробный вывод этой формулы, а также диссипативной функции Релея, что замыкает полную систему спиновой динамики двухподрешеточного антиферромагнетика.

о неортогональности когерентных спиновых состояний. Из двух пар сопряженных переменных (ρ, φ) и (ϑ, β) вторую пару мы опустим в последующем анализе поскольку она, как будет показано ниже, не влияет на эффект Коттона-Мутона и не дает вклад в дупреломление при $\mathbf{E} = (E_x, E_y, 0)$.

Таким образом, подставляя в выражения (1), (3) $\mathbf{n}_i = (\sin \vartheta_i \cos \varphi_i, \sin \vartheta_i \sin \varphi_i, \cos \vartheta_i)$, полагая в них $\vartheta = \vartheta_0 + \vartheta_1$, $\varphi = \varphi_0 + \varphi_1$, где $\vartheta_1, \varphi_1 \ll 1$ и удерживая только слагаемые до второго порядка малости по $\vartheta_1, \varphi_1, \rho, \beta$ и опуская гармонические слагаемые, как обычно в рамановском процессе с частотами $\omega_1 + \omega_2$, и произведя стандартное преобразование Фурье от узельного представления к квазиимпульсному, получим

$$U_{\text{ex}} = JS^2 \frac{Z}{2N} \times \quad (9)$$

$$\times \sum_{\mathbf{k}} \left[(1 + \gamma_{\mathbf{k}}) \rho_{\mathbf{k}} \rho_{-\mathbf{k}} + \sin^2 \vartheta_0 (1 - \gamma_{\mathbf{k}}) \varphi_{1,\mathbf{k}} \varphi_{1,-\mathbf{k}} \right],$$

$$U_A = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} |K| (-\cos 2\vartheta_0 \rho_{\mathbf{k}} \rho_{-\mathbf{k}} + \sin^4 \vartheta_0 \varphi_{1,\mathbf{k}} \varphi_{1,-\mathbf{k}}), \quad (10)$$

$$\Delta U_{\text{ex}}^{sp} = S^2 E_0^2 \frac{Z}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \left[w_{\mathbf{k}} \rho_{\mathbf{k}} \rho_{-\mathbf{k}} + \right. \quad (11)$$

$$\left. + \sin^2 \vartheta_0 \frac{a_1 + a_2}{2} (1 - \gamma_{\mathbf{k}}) \varphi_{1,\mathbf{k}} \varphi_{1,-\mathbf{k}} \pm \right.$$

$$\left. \pm \frac{a_1 - a_2}{2} \sin^2 \vartheta_0 (1 + \gamma_{\mathbf{k}}) \cos 2\alpha \frac{\varphi_{1,\mathbf{k}} + \varphi_{1,-\mathbf{k}}}{2} \right] \times$$

$$\times f(t) \cos(\omega_p t + \zeta) \mp \frac{a_3}{2} \rho_{\mathbf{k}} \rho_{-\mathbf{k}} \sin 2\alpha f(t) \sin(\omega_p t + \zeta) \left. \right\},$$

где Z – число ближайших соседей, N – число магнитных узлов в образце, $w_{\mathbf{k}} = \frac{a_1 + a_2}{2} \sin^2 \vartheta_0 + a_2 \cos^2 \vartheta_0 + \gamma_{\mathbf{k}} \left(\frac{a_1 + a_2}{2} \cos^2 \vartheta_0 + a_2 \sin^2 \vartheta_0 \right)$, $f(t)$ – функция, описывающая длительность и форму импульса лазера, ζ – фаза, зависящая от начала отсчета времени, а $\gamma_{\mathbf{k}} = \frac{1}{Z} \sum_{\delta=1}^6 e^{i\mathbf{k}\delta}$.

5. Уравнения Эйлера–Лагранжа. Для описания спиновой динамики двухподрешеточного антиферромагнетика запишем уравнения Эйлера–Лагранжа для функции Лагранжа (6) со слагаемыми (7), (9) и (10), которые имеют вид

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{\mathbf{k}} - \omega_{\varphi} [1 + h_{\varphi} \psi(t)] \varphi_{1,\mathbf{k}} &= \pm T_{\mathbf{k}}^{\varphi}, \\ \dot{\varphi}_{1,\mathbf{k}} + \omega_{\rho} [1 + h_{\rho} \psi(t)] \rho_{\mathbf{k}} &= 0, \end{aligned} \quad (12)$$

где

$$\omega_{\varphi} = \frac{JSZ(1 - \gamma_{\mathbf{k}})}{2\hbar \sin \vartheta_0} + \frac{4|K|}{3\hbar \sin \vartheta_0},$$

$$\omega_{\rho} = \frac{JSZ(1 + \gamma_{\mathbf{k}})}{2\hbar \sin \vartheta_0} - |K| \frac{\cos 2\vartheta_0}{S\hbar \sin \vartheta_0},$$

$$T_{\mathbf{k}}^{\varphi} = \frac{4E_0^2 S \sin \vartheta_0}{\hbar} \frac{a_1 - a_2}{2} \cos(2\alpha) \gamma_{\mathbf{k}} \psi(t),$$

$$h_{\varphi} = \frac{E_0^2 \sin^2 \vartheta_0}{J} \frac{a_1 + a_2}{2},$$

$$h_{\rho} = \frac{E_0^2 w_{\mathbf{k}}}{J(1 + \gamma_{\mathbf{k}})},$$

а $\psi(t) = f(t) \cos(\omega_p t + \zeta)$.

Уравнения (12) описывают динамику магнона с частотой $\omega_{\mathbf{k},M} = \sqrt{\omega_{\varphi} \omega_{\rho}}$, возбуждаемого одновременно двумя вращающимися моментами: внешним (правая часть уравнения (12)), представляющим собой обратный эффект Коттона–Мутона и внутренним – параметрическим воздействием. Последнее проявляется главным образом в области неустойчивости, то есть в области параметрического резонанса. Наличие параметрической неустойчивости значительно усиливает реакцию системы на воздействие обратного эффекта Коттона–Мутона (рис. 2а). Представим переменные $\rho_{\mathbf{k}}$ и $\varphi_{1,\mathbf{k}}$ согласно теории Флоке в виде:

$$\begin{pmatrix} \rho_{\mathbf{k}} \\ \varphi_{1,\mathbf{k}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c_{11} \\ c_{21} \end{pmatrix} e^{i\omega_p t/2} + \begin{pmatrix} c_{12} \\ c_{22} \end{pmatrix} e^{-i\omega_p t/2}, \quad (13)$$

где $c_{i1}(t)$ и $c_{i2}(t)$ – действительные функции, периодически зависящие от времени с периодом накачки ($T_p = \frac{2\pi}{\omega_p}$), очевидно, что $c_{ij,\mathbf{k}}^* = c_{ij,-\mathbf{k}}$, а частота ω является собственным значением однородной системы уравнений (12). Они аналогичны функциям Блоха в теории кристаллов, а саму исследуемую систему (12) и ей подобные параметрические системы, в последнее время называют “кристаллами времени” [25]. В данном случае, поскольку мы интересуемся лишь порогом возникновения неустойчивости вблизи основного параметрического резонанса, будем полагать $|\omega - \omega_p/2| \ll 1$.

Подставляя выражение (13) в систему уравнений (12), опуская нерезонансные члены типа $e^{i2\omega_p t}$, как обычно в теории Флоке, и полагая для достаточно длинных импульсов $f(t) \equiv 1$, после несложных вычислений можно свести задачу на собственные значения к решению четырех линейных дифференциальных уравнений с постоянными коэффициентами. Тогда задача на собственные значения полученных дифференциальных уравнений сводится к решению алгебраического уравнения – детерминант 4×4 , составленный из коэффициентов системы уравнений (12) равен нулю, решение которого является алгебраически громоздким и мало наглядным. В

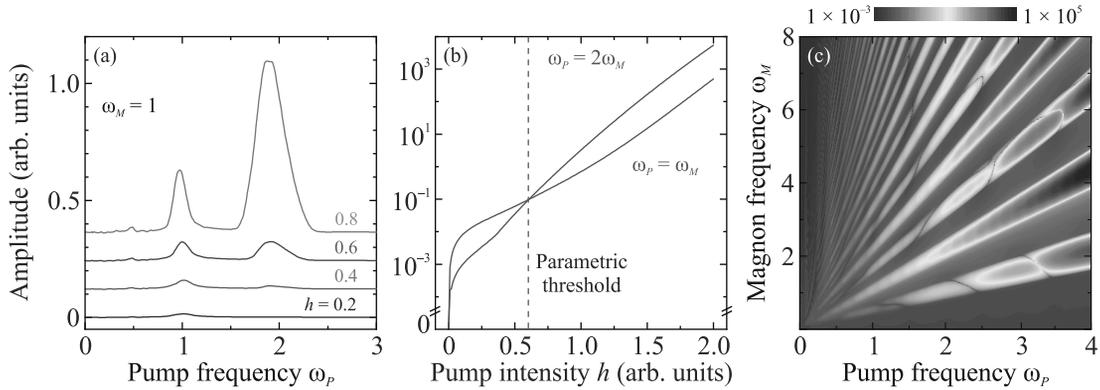


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость амплитуды наведенной эллиптичности, полученной при решении уравнения (17): (a) – от частоты импульсов накачки ω_p при различных значениях интенсивности накачки h . (b) – От интенсивности накачки h при $\omega_p = \omega_M$ и $\omega_p = 2\omega_M$. Штриховой линией показано пороговое значение параметрического возбуждения. (c) – Цветовая карта амплитуды наведенной эллиптичности (в логарифмическом масштабе) при различных частотах импульсов накачки ω_p и магнитной динамики ω_M при интенсивности накачки выше порога развития параметрической неустойчивости

частном случае $\omega_\varphi = 0$ оно значительно упрощается, сохраняя основные черты общего уравнения и может быть представлено в виде известной формулы [11]

$$\rho_{\mathbf{k}} = -\nu_{\mathbf{k}} + \sqrt{-(\omega - \omega_{\mathbf{k}})^2 + \frac{h_p^2 \omega_p^2}{4}}, \quad (14)$$

где $\rho_{\mathbf{k}}$ является мнимой частью собственной частоты ω вблизи порога параметрической неустойчивости, оно определяет инкремент возрастания амплитуды генерируемых магнонов, а $\nu_{\mathbf{k}}$ – частота затухания магнонов. Отсюда сразу следует известная формула для порогового значения развития параметрической неустойчивости при частоте накачки $\omega_p \approx 2\omega_{\mathbf{k}}$ [8], при этом величина поля накачки должна быть равна $|h_p \omega_{\mathbf{k}}| = \nu_{\mathbf{k}}$. Этот порог параметрической неустойчивости является, по-видимому, минимальным. В рассматриваемой системе могут возбуждаться и другие неустойчивые моды, характеризующиеся другими порогами и частотами (см., например, рис. 3с).

Приведенная формула для параметрического порога по частоте определяет область (поверхность) в \mathbf{k} -пространстве, содержащей когерентные \mathbf{k} и $-\mathbf{k}$ пары магнонов, взаимодействующие между собой через поле накачки. Такое “спаривание” магнонов напоминает куперовские пары в сверхпроводниках [11], но в отличие от последних образуется только во время накачки, хотя и может сохраняться некоторое время после прекращения накачки. Можно указать также на некоторую аналогию с рождением пар \mathbf{k} и $-\mathbf{k}$ электронов методами нелинейной квантовой оптики. Такое когерентное “спаренное” состояние магнонов с точки зрения квантовой механики является запутан-

ным (entangled) состоянием и открывает интересные экспериментальные возможности.

7. Эффект Коттона–Мутона. Напомним, что эффект Коттона–Мутона (или эффект Фохта, или магнитное линейное двупреломление) – это магнитооптический эффект, который заключается в возникновении эллиптической поляризации при прохождении линейно поляризованного света через среду, плоскость поляризации которого ориентирована под углом к магнитному параметру порядка (намагниченности или антиферромагнитному вектору), квадратичный по магнитному параметру порядка [26, 27]. В свою очередь обратный эффект Коттона–Мутона проявляется в изменении магнитного параметра порядка по действием линейно-поляризованного света [1].

Генерация спиновых волн, индуцированная накачкой, описываемая функциями $\rho_{\mathbf{k}}$ и $\frac{\varphi_{1,\mathbf{k}} + \varphi_{1,-\mathbf{k}}}{2}$ может быть обнаружена зондирующими импульсами через линейное магнитное двупреломление (т.е. прямым эффектом Коттона–Мутона). Дифференцируя ΔU_{ex}^{sp} (11) дважды по E_x и дважды по E_y , получаем

$$\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy} = \mp JS^2 Z \sin^2 \vartheta_0 \sum_{\mathbf{k}} (1 + \gamma_{\mathbf{k}}) \frac{\varphi_{1,\mathbf{k}} + \varphi_{1,-\mathbf{k}}}{2}. \quad (15)$$

Подставляя выражение (15) в уравнение Френеля при $\mathbf{K} = (0, 0, 1)$, получим формулу для эффекта двупреломления [26].

$$\frac{\Delta n}{n_0} = n_1 - n_2 \approx \pm \frac{2}{3} \frac{\varkappa}{n_0^2} \sum_{\mathbf{k}} (1 + \gamma_{\mathbf{k}}) \frac{\varphi_{1,\mathbf{k}} + \varphi_{1,-\mathbf{k}}}{2}, \quad (16)$$

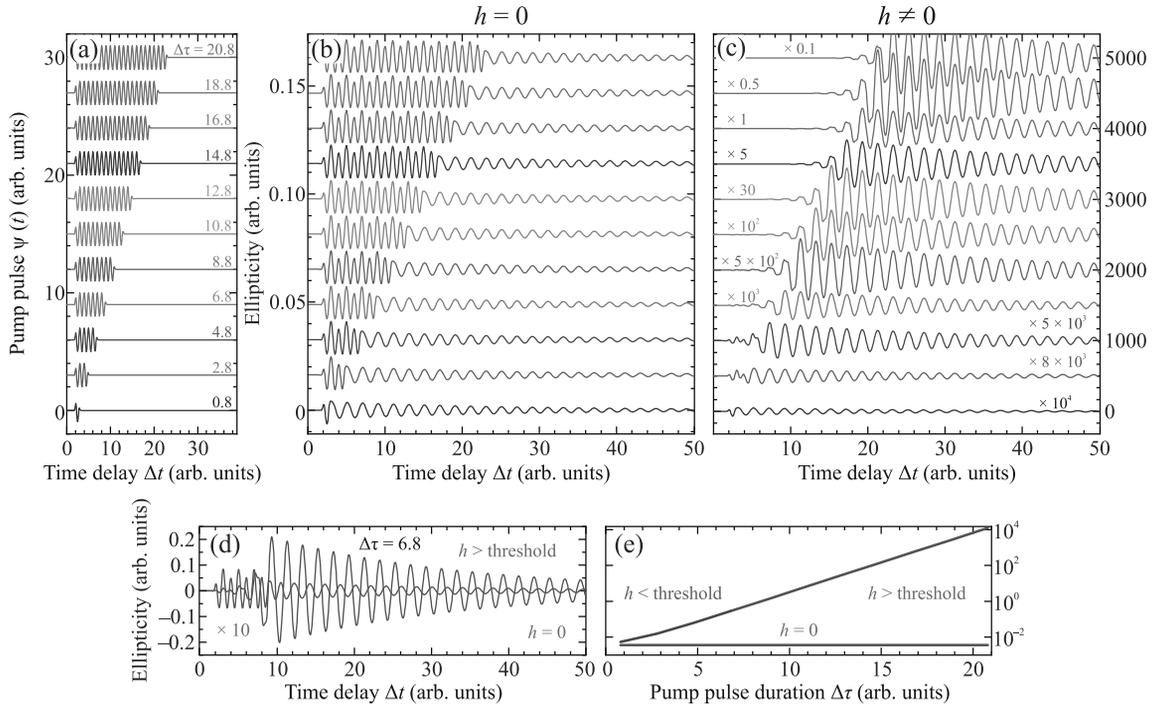


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Временные профили импульсов накачки $\psi(t)$ разной длительности $\Delta\tau$, рассчитанные согласно уравнению (18). Временные зависимости эллиптичности, индуцированной лазерными импульсами с поляризацией $\mathbf{E} \parallel x$ (из панели (а)), полученные при решении уравнения (17) при $\omega_p = 2\omega_M$ и (б) – равном и (с) – не равном нулю параметре h . На панелях (с) и (д) указаны масштабирующие множители. Цветами на панелях (а), (б) и (с) обозначены равные длительности импульсов накачки $\Delta\tau$. (д) – Временные зависимости эллиптичности индуцированной лазерными импульсами накачки длительностью $\Delta\tau = 6.8$ при параметре h , равном нулю, а также выше порога развития параметрической неустойчивости. (е) – Зависимости амплитуды наведенной эллиптичности от длительности лазерных импульсов накачки $\Delta\tau$ при параметре h , равном нулю и не равном нулю со значениями ниже и выше порога развития параметрической неустойчивости

где показатель двупреломления \varkappa , который, согласно симметрии, можно определить через диэлектрическую проницаемость как $\varepsilon_{ii} = \varepsilon_0 + \varkappa l_i^2$ и который измеряется стандартными методами в равновесных условиях, в данной модели $\varkappa = JS^2ZN$, n_0 – показатель преломления, а $\varphi_{1,\mathbf{k}}(t) = \frac{\dot{\varrho}_{0,\mathbf{k}} \mp 2T_{\mathbf{k}}^\varphi}{\omega_\varphi}$ определяется уравнением (12), а знаки \pm относятся к доменам с $\varphi = \frac{\pi}{2}$ и $\frac{3\pi}{2}$. Стоит отметить, что экспериментально в магнитооптическом эффекте Коттона–Мутона напрямую измеряется не двупреломление а эллиптичность света, которая прямо пропорциональна двупреломлению среды Δn через ее толщину [28]. Таким образом, далее мы будем обсуждать эллиптичность, наведенную импульсом накачки, полагая толщину антиферромагнетика равной единице.

8. Моделирование спиновой динамики. В общем случае при $h_\varphi \neq 0$ и $h_\rho \neq 0$ решение системы дифференциальных уравнений (12), описыва-

ющей спиновую динамику антиферромагнетика, наведенную импульсом накачки, является весьма громоздким. На рисунке 1d показана цветовая карта, соответствующая разности амплитуд осцилляций эллиптичности, наведенных импульсами накачки параметрически ($\omega_p = 2\omega_M$) и резонансно ($\omega_p = \omega_M$). Участки вне черной области соответствуют коэффициентам h_φ и h_ρ , при которых развивается параметрическая неустойчивость и амплитуда осцилляций, наведенных параметрически превосходит наведенные резонансно и их разность положительна. Границы черной области соответствуют пороговым значениям параметрической неустойчивости.

Для выяснения основных особенностей параметрического резонанса и увеличения эффекта Коттона–Мутона за счет параметрической неустойчивости мы ограничимся моделированием частного случая, когда $a_1 = -a_2$ ($h_\varphi = 0$, $h = h_\rho$). В этом случае систему уравнений (12) можно свести к дифференциальному уравнению второго порядка с

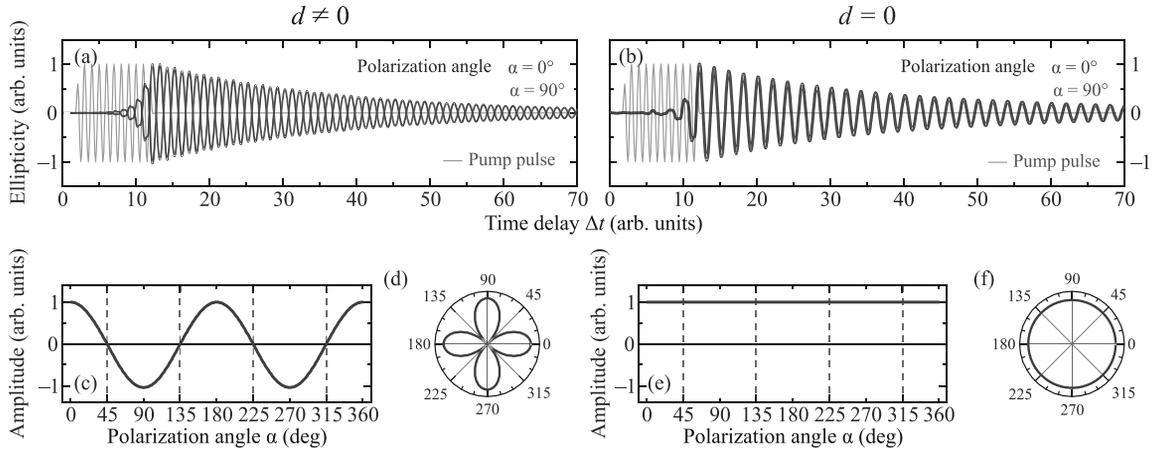


Рис. 4. (Цветной онлайн) Временные зависимости, эллиптичности индуцированной лазерными импульсами с поляризациями \mathbf{E} , направленными вдоль осей x ($\alpha = 0^\circ$, синяя кривая) и y ($\alpha = 90^\circ$, красная кривая) благодаря параметрическому резонансу и обратному эффекту Коттона–Муттона в двухподрешеточном антиферромагнетике, рассчитанные: (a) – с учетом ($d \neq 0$) и (b) – без учета ($d = 0$) правой части уравнения (17). Зависимости амплитуды осцилляций индуцированной эллиптичности от угла поляризации электрического поля \mathbf{E} лазерного импульса α , рассчитанные (c), (d) – с учетом ($d \neq 0$) и (e), (f) – без учета ($d = 0$) правой части уравнения (17). Смена знака на панели (c) при изменении угла α соответствует изменению фазы осцилляций эллиптичности на π . На полярных диаграммах (d), (f) показан модуль амплитуды осцилляций наведенной эллиптичности

постоянными коэффициентами подробно изученного во многих работах по теории параметрического резонанса [8, 11, 29, 12]. Введем новую переменную $\varrho = \rho_{\mathbf{k}} + \rho_{-\mathbf{k}}$, которая описывает упомянутое выше когерентное, спаренное состояние с нулевым квазиимпульсом. Тогда исключая переменную $\varphi_{0,\mathbf{k}}$, система уравнений (12) может быть преобразована в уравнение второго порядка для ϱ

$$\ddot{\varrho} + \frac{2}{\tau}\dot{\varrho} + \omega_\varphi\omega_\rho[1 + h\psi(t)]\varrho = d\dot{\psi}(t)\cos 2\alpha, \quad (17)$$

где для моделирования использованы безразмерные величины: τ – затухание, $\sqrt{\omega_\varphi\omega_\rho}$ – собственная частота спиновой динамики, h – величина, пропорциональная интенсивности лазерного импульса накачки, d – параметр, определяющий величину эффекта Коттона-Муттона и интенсивность накачки, время t измеряется в периодах колебаний импульса накачки. Функция $\psi(t)$ описывает длительность и форму импульса накачки в соответствии с выражением

$$\psi(t) = \left[\frac{1}{e^{n(t-t_2)} + 1} - \frac{1}{e^{n(t-t_1)} + 1} \right] \cos(\omega_p t), \quad (18)$$

где t_1 и t_2 – время начала и конца импульса накачки ($\Delta\tau = t_2 - t_1$), n – крутизна возрастания и спада импульса. Стоит отметить, что производная по времени от угла скоса подрешеток $\dot{\rho}$, которая является решением уравнения (17), определяет зависимость от времени для наведенной эллиптичности согласно выражению (16).

В эксперименте по лазерно-индуцированной магнитной динамике в гейзенберговском антиферромагнетике RbMnF_3 был использован импульс накачки длительностью 45 фс и центральной энергией 1.03 эВ [30]. Параметры в выражении (18) были подобраны таким образом, чтобы в модели импульса накачки было также, как в эксперименте около 10 периодов ($\Delta\tau = t_2 - t_1 = 10$), как показано зеленой кривой на рис. 4а и б. Решая уравнение (17) с частотой накачки $\omega_p = 2\omega_M$ и интенсивностью h выше порога развития параметрической неустойчивости, были получены временные зависимости наведенной эллиптичности, рассчитанные используя выражение (16), содержащие осцилляции на частоте ω_M , как показано на рис. 4а. Кроме того, видно, что для двух поляризаций импульса накачки \mathbf{E} вдоль осей x ($\alpha = 0^\circ$, синяя кривая) и y ($\alpha = 90^\circ$, красная кривая) фаза наведенной эллиптичности меняется на π . Более того, как видно на рис. 4с и d при повороте плоскости поляризации импульса накачки ($\alpha = 0.360^\circ$) амплитуда наведенной эллиптичности ведет себя как $\cos 2\alpha$, где смена знака соответствует изменению фазы осцилляций на π , что соответствует результату полученному в эксперименте [30]. При этом, если в уравнении (17) правую часть положить равной нулю ($d = 0$), то при таких же параметрах импульсов накачки осцилляции наведенной эллиптичности будут возбуждаться на той же частоте ω_M (см. рис. 4б), но их амплитуда

не зависит от угла поляризации, как показано на рис. 4е и ф.

Анализ решений уравнения (17) с фиксированной собственной частотой спиновой динамики ω_M и изменяющейся частоте импульсов накачки ω_p при нескольких значениях интенсивности h показал, что при совпадении частот $\omega_p = \omega_M$ наводится эллиптичность при любых положительных интенсивностях h , как показано на рис. 2а. Напротив, при параметрическом возбуждении с частотой накачки $\omega_p = 2\omega_M$ амплитуда осцилляций наведенной эллиптичности имеет ярко выраженный пороговый характер по интенсивности накачки h . При $h > 0.57$ спиновая динамика наиболее эффективно возбуждается при параметрической накачке с $\omega_p = 2\omega_M$ чем при резонансной $\omega_p = \omega_M$ как можно видеть на рис. 2а и б. Вообще говоря, величина порога развития параметрической неустойчивости зависит от длительности импульса накачки, чем больше длительность, тем ниже порог. Кроме того, величина порога зависит от формы импульсов накачки, что требует дальнейшего исследования. Амплитуда наведенных осцилляций эллиптичности при параметрическом возбуждении $\omega_p = 2\omega_M$ экспоненциально зависит от интенсивности накачки h при значениях выше порога, как показано на рис. 2б. Стоит отметить, что в эксперименте зависимость амплитуды осцилляций наведенной эллиптичности от интенсивности накачки была линейной [30]. По-видимому, это связано с тем, что в нашем рассмотрении не учитываются нелинейные эффекты, ограничивающие параметрическое возбуждение. От параметра d , стоящего в правой части уравнения (17), амплитуда осцилляций наведенной эллиптичности зависит линейно, что указывает на то, что этот коэффициент определяет величину эффекта Коттона–Муттона в этом процессе.

На карте, изображенной на рис. 2с, приведена цветом зависимость амплитуды наведенных осцилляций эллиптичности от частоты импульсов накачки ω_p и собственных частот спиновой динамики ω_M . Зеленый цвет соответствует минимальным значениям, коричневый – максимальным, масштаб по интенсивности логарифмический. Видно, что при накачке с частотой ω_p возбуждаются не только спиновая динамика на половинной частоте $\omega_M = \omega_p/2$, но и на резонансной частоте $\omega_M = \omega_p$ и других частотах.

Далее были рассмотрены решения уравнения (17) для случаев, когда параметр $h = 0$, т.е. без параметрической неустойчивости, и $h \neq 0$ при разной длительности импульсов накачки $\Delta\tau$ с временным профилем $\psi(t)$ и частотой $\omega_p = 2\omega_M$, как показано на рис. 3. Далее импульсы накачки будут поляризованы

вдоль оси x , если не указано иное. В случае, когда параметр $h = 0$ осцилляции эллиптичности наводятся при любой длительности импульсов накачки $\Delta\tau$, а их амплитуда не зависит от длительности, как показано на рис. 3б и е. Напротив, при параметре $h \neq 0$, согласно уравнению (17), амплитуда осцилляций наведенной эллиптичности экспоненциально возрастает с увеличением длительности импульсов $\Delta\tau$, как можно видеть на рис. 3с и е. Временные зависимости наведенной эллиптичности изображены с учетом масштабных множителей, приведенных на рис. 3с и д. При параметрическом возбуждении резкий рост амплитуды осцилляций наведенной эллиптичности наблюдается по времени сразу после действия импульса накачки, т.е. через время $\Delta\tau$, как можно увидеть на рис. 3д. Как было отмечено ранее, порог развития параметрической неустойчивости зависит от длительности импульса $\Delta\tau$ и фиксированная величина параметра h для импульсов с $\Delta\tau < 6$ меньше порога, а при $\Delta\tau > 6$ превосходит его, как указано на рис. 3е. В результате, с ростом длительности импульса $\Delta\tau$ накачки наблюдается гигантское параметрическое усиление обратного эффекта Коттона–Муттона в антиферромагнетике.

Механизм, рассмотренной в статье параметрической неустойчивости, может реализовываться как результат следующих процессов взаимодействия света со спинами. Во-первых, электрическое поле лазерного импульса \mathbf{E} , модулируя обменное взаимодействие спинов $\mathcal{J}\mathbf{S}_i\mathbf{S}_j$, создает условие для параметрической неустойчивости. Это может происходить, например, за счет обратного магниторефрактивного эффекта [31, 32]. Обратный эффект Коттона–Муттона создает внешний вращающий момент действующий на спины, приводит к “ ρ -скосу” соседних спинов (“ ρ -canting”), обеспечивает “азимутальный” выход спинов, а следовательно, и антиферромагнитного вектора \mathbf{L} из положения равновесия. При этом обеспечивается параметрическая неустойчивость даже при нулевых начальных условиях. В свою очередь, зависимость генерации магнонов от поляризации падающего света задается поляризационной зависимостью обратного эффекта Коттона–Муттона и пропорциональна $\cos 2\alpha$.

Заключение. В работе представлены результаты теоретического исследования влияния скоса магнитных подрешеток под действием короткого лазерного импульса накачки на параметрическое возбуждение обратного эффекта Коттона–Муттона в гейзенберговском антиферромагнетике. Показано, что интенсивность обратного эффекта Коттона–Муттона очень сильно возрастает вблизи параметрического

резонанса, т.е. в области параметрической неустойчивости. Показано, что эллиптичность, наведенная импульсом накачки, пропорциональна производной по времени от угла скоса магнитных подрешеток. Установлено, что угол скоса магнитных подрешеток описывается дифференциальным уравнением параметрического резонанса типа Хилла с возбуждающей силой. Выявлено, что параметрически наведенная эллиптичность, при наличии возбуждающей силы в дифференциальном уравнении зависит от угла между поляризацией импульсов накачки и основными кристаллографическими осями как $\cos 2\alpha$, причем при повороте плоскости поляризации на 90° фаза осцилляций меняется на π . При этом, когда возбуждающая сила равна нулю амплитуда осцилляций не зависит от угла поляризации. Установлено, что параметрическое возбуждение наведенной эллиптичности происходит при превышении интенсивности импульса накачки порогового значения. Показано, что амплитуда наведенной эллиптичности при параметрическом возбуждении зависит экспоненциально от длительности и интенсивности импульса накачки.

Финансирование работы. А. К. Звездин благодарит за финансовую поддержку Российский научный фонд (грант # 22-12-00367). Р. М. Дубровин благодарит за финансовую поддержку Министерство науки и высшего образования (соглашение FSWR-2021-011) и Российский научный фонд (грант # 22-72-00025).

Конфликт интересов. Конфликт интересов отсутствует.

Авторы заявляют, что эта работа была опубликована в результате равноправного научного сотрудничества между исследователями. Предоставленные аффилиации отражают фактические адреса авторов в соответствии с их цифровым идентификатором (ORCID) и не могут рассматриваться как официальное сотрудничество между вышеупомянутыми учреждениями.

1. А. М. Калашникова, А. В. Кимель, Р. В. Писарев, УФН **185**, 1064 (2015).
2. В. Я. Kotyuzhanskii and L. A. Prozorova, ZhETF **81**, 1913 (1981).
3. C. W. Sandweg, Y. Kajiwara, A. V. Chumak, A. A. Serga, V. I. Vasyuchka, M. B. Jungfleisch, E. Saitoh, and B. Hillebrands, Phys. Rev. Lett. **106**, 216601 (2011).
4. S. W. Teitelbaum, T. Henighan, Y. Huang, H. Liu, M. P. Jiang, D. Zhu, M. Chollet, T. Sato, É. D. Murray, S. Fahy, S. O'Mahony, T. P. Bailey, C. Uher, M. Trigo, and D. A. Reis, Phys. Rev. Lett. **121**, 125901 (2018).
5. S. Maehrlein, A. Paarmann, M. Wolf, and T. Kampfrath, Phys. Rev. Lett. **119**, 127402 (2017).
6. A. Cartella, T. F. Nova, M. Fechner, R. Merlin, and A. Cavalleri, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **115**, 12148 (2018).
7. D. M. Juraschek, Q. N. Meier, and P. Narang, Phys. Rev. Lett. **124**, 117401 (2020).
8. H. Suhl, J. Phys. Chem. Solids **1**, 209 (1957).
9. E. Schlömann, Phys. Rev. **116**, 828 (1959).
10. E. Schlömann, J. J. Green, and U. Milano, J. Appl. Phys. **31**, S386 (1960).
11. V. E. Zakharov, V. S. L'vov, and S. S. Starobinets, Sov. Phys.-Uspekhi **17**, 896 (1975).
12. А. Г. Гуревич, Г. А. Мелков, *Магнитные осцилляции и волны*, Наука, М. (1994).
13. V. I. Ozhogin and A. Yu. Yakubovsky, Phys. Lett. A **43**, 505 (1973).
14. V. S. L'vov and M. I. Shirokov, ZhETF **67**, 1932 (1974).
15. S. A. Govorkov, V. A. Tulin, ZhETF **70**, 1876 (1976).
16. A. S. Borovik-Romanov and L. A. Prozorova, Contemp. Phys. **19**, 311 (1978).
17. A. I. Smirnov, ZhETF **84**, 2290 (1983).
18. V. S. L'vov and L. A. Prozorova, *Spin Waves Above the Threshold of Parametric Excitations*, Elsevier, Amsterdam (1988).
19. D. T. Teaney, M. J. Freiser, and R. W. H. Stevenson, Phys. Rev. Lett. **9**, 212 (1962).
20. A. M. Perelomov, Sov. Phys.-Uspekhi **20**, 703 (1977).
21. E. Fradkin, *Field theories of condensed matter physics*, Cambridge University Press, N.Y. (2013).
22. А. К. Звездин, Краткие сообщения по физике ФИАН **12**, 13 (1999); arXiv preprint cond-mat/0004074 (2000).
23. А. Ф. Андреев, В. И. Марченко, УФН **130**, 39 (1980).
24. А. К. Звездин, А. А. Мухин, Краткие сообщения по физике ФИАН **12**, 10 (1981).
25. K. Sacha and J. Zakrzewski, Rep. Prog. Phys. **81**, 016401 (2017).
26. A. K. Zvezdin and V. A. Kotov, *Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials*, CRC Press, Boca Raton (1997).
27. J. Ferré and G. A. Gehring, Rep. Prog. Phys. **47**, 513 (1984).
28. Г. А. Смоленский, Р. В. Писарев, И. Г. Синий, УФН **116**, 231 (1975).
29. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика. Том 1. Механика*, Наука, М. (1973).
30. F. Formisano, T. T. Gareev, D. I. Khusyainov, A. E. Fedianin, R. M. Dubrovina, P. P. Syrnikov, D. Afanasiev, R. V. Pisarev, A. M. Kalashnikova, J. H. Mentink, and A. V. Kimel, APL Mater. **12**, 011105 (2024).
31. R. R. Subkhangulov, A. B. Henriques, P. H. O. Rappl, E. Abramof, Th. Rasing, and A. V. Kimel, Sci. Rep. **4**, 4368 (2014).
32. R. V. Mikhaylovskiy, E. Hendry, A. Secchi, J. H. Mentink, M. Eckstein, A. Wu, R. V. Pisarev, V. V. Kruglyak, M. I. Katsnelson, Th. Rasing, and A. V. Kimel, Nat. Commun. **6**, 8190 (2015).