

Динамическая спиновая переориентация в ортоферритах под действием лазерного импульса

Е. Г. Галкина⁺, И. Ю. Михайлов*, Б. А. Иванов^{∇*1)}

⁺ Институт физики НАН Украины, 03028 Киев, Украина

* Киевский национальный университет им. Тараса Шевченко, 03127 Киев, Украина

[∇] Институт магнетизма НАН Украины, 03142 Киев, Украина

Поступила в редакцию 11 апреля 2011 г.

Построена теория динамической спиновой переориентации в антиферромагнетике под действием фемтосекундного лазерного импульса с учетом как нетеплового действия импульса за счет обратного эффекта Фарадея, так и теплового действия импульса. Показано, что даже слабый разогрев спиновой подсистемы импульсом может существенно усилить эффект переориентации. Обсуждается возможность применения этого эффекта для повышения эффективности возбуждения спиновых колебаний.

Исследования последних десяти лет показали, что сверхкороткие, с длительностью порядка сотен фемтосекунд, лазерные импульсы можно использовать для предельно быстрого воздействия на различные магнетики [1–3]. Для ферромагнитных металлов воздействие реализуется прежде всего за счет сильного (до 10^3 К) разогрева магнитной подсистемы. Недавние эксперименты [4, 5], см. также обзор [6], показали, что воздействие короткого лазерного импульса излучения циркулярной поляризации на прозрачные антиферромагнетики за счет обратного эффекта Фарадея [7], см. также [8], эквивалентно генерации импульса магнитного поля с длиной Δt порядка ширины импульса излучения и максимальным значением поля H_p до 1 Т. Действие импульса поля на ортоферриты приводит к нетепловому возбуждению спиновых колебаний, в том числе существенно нелинейных колебаний. В частности, для ортоферрита гольмия HoFeO_3 при температуре, близкой к температуре переориентационного фазового перехода первого рода $T_2 \simeq 51$ К, амплитуда сравнима с расстоянием между минимумами энергии анизотропии, отвечающими различным фазам, Γ_{12} и Γ_{24} , что приводит к спиновой переориентации после действия импульса [5]. Напомним, что в фазах Γ_{12} и Γ_{24} вектор антиферромагнетизма \mathbf{l} находится в плоскостях bc и ac ортоферрита соответственно, образуя с осью c угол $\theta = \theta_0$. Около точки перехода $\theta_0 \simeq 20^\circ$ [9, 10]. Заметим, что для ортоферрита диспрозия DyFeO_3 , в котором также есть переориентационный переход первого рода (переход Морина при $T = T_M \simeq 39$ К, см. [11]), возбуждение спиновых колебаний наблю-

далось в широком интервале температур, включающем T_M , но эффект переориентации обнаружен не был [4].

В настоящей работе мы исследовали эффект разогрева образца после действия импульса и показали, что учет этого эффекта важен для описания экспериментов, выполненных по схеме работ [4, 5]. Мы показали, что даже слабый разогрев спиновой подсистемы импульсом может существенно усилить амплитуду спиновых колебаний. Это дает возможность реализации эффекта спиновой переориентации даже для таких антиферромагнетиков, в которых отсутствует слабый ферромагнитный момент, например для ортоферрита диспрозия DyFeO_3 или гематита $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ниже точки Морина [11, 12]. Анализ показал, что такое быстрое импульсное возбуждение системы с медленно меняющимися параметрами открывает широкие возможности для реализации существенно нелинейных колебаний, в частности динамической переориентации спинов в магнетиках.

Начнем с анализа случая HoFeO_3 . Для него в фазах, существующих около T_2 , вектор \mathbf{l} наклонен к полярной оси z на угол $\theta_0 \simeq 20^\circ$ [9, 10]. Выберем угловые переменные для вектора \mathbf{l} в виде $l_a = \sin \theta \sin \varphi$, $l_b = \sin \theta \cos \varphi$. Тогда исходной фазе Γ_{12} отвечает значение $\varphi = 0$, а фазе Γ_{24} – значение $\varphi = \pi/2$. Как показано в работе [5], динамическая переориентация может быть описана решением уравнения σ -модели вида $\theta = \theta_0 = \text{const}$, $\varphi = \varphi(t)$. Таким образом, при $H = 0$ (то есть вне времени действия короткого импульса поля) можно ограничиться анализом только этого случая. Варьируя лагранжиан σ -модели [13, 14] при $\theta = \text{const}$ и импульсном магнитном поле, обусловленном обратным эффектом Фарадея, $\mathbf{H}(t)$, па-

¹⁾ e-mail: bivanov@i.com.ua

параллельном c -оси ортоферрита, легко записать уравнение для $\varphi(t)$ в виде

$$\frac{d^2\varphi}{dt^2} + 2\Gamma\frac{d\varphi}{dt} + \omega_0^2\frac{d\varphi}{dt} + \gamma\Omega_D H(t)\cos\varphi - \gamma\frac{dH}{dt} = 0. \quad (1)$$

Здесь γ – гиромагнитное отношение, слагаемое с $d\varphi/dt$ феноменологически учитывает релаксацию в спиновой системе, $\Gamma \ll \omega_0$ – декремент затухания магнонов линейной теории, величина $\Omega_D \cos\varphi$ пропорциональна проекции слабого ферромагнитного момента \mathbf{m} на ось a [5], $m_a = (H_D/H_e)\sin\theta\cos\varphi$, H_D и H_e – поле Дзялошинского и обменное поле соответственно. Дополнительно к [5] в (1) выписано слагаемое с производной поля по времени, которое дает возможность возбуждения спиновых колебаний даже при $\Omega_D = 0$ [15]. Последнее реализовано экспериментально для оксида никеля NiO [16]. Функция $w(\varphi)$ пропорциональна энергии анизотропии при $\theta = \theta_0$. Вблизи перехода первого рода $w(\varphi)$ можно представить в виде

$$w(\varphi) = \frac{1}{2}A\sin^2\varphi + \frac{1}{8}\sin^2 2\varphi. \quad (2)$$

Здесь $A = A(T)$ есть функция температуры, которая обращается в нуль в точке перехода первого рода $T = T_2$, когда энергии фаз с $\varphi = 0$ и $\varphi = \pi/2$ (для NiFeO_3 это низкотемпературная фаза Γ_{12} и высокотемпературная Γ_{24} соответственно) сравниваются. Фазы сосуществуют при $|A| < 1$. Значения $A = -1$ и $A = 1$ определяют точки лабильности фаз Γ_{12} и Γ_{24} соответственно. Величина ω_0 равна частоте спиновых колебаний в точке перехода $A = A(T_2) = 0$.

В работе [5] было показано, что после окончания действия короткого импульса поля с амплитудой H_p и шириной $\Delta t \ll 1/\omega_0$, где $H_p\Delta t = \int H(t)dt$, спиновая динамика описывается уравнением (1) с $H(t) = 0$, но с ненулевым значением $(d\varphi/dt)_{t=+0} = (d\varphi/dt)_0 = \gamma\Omega_D H_p\Delta t$. Слагаемое с dH/dt приводит дополнительно к ненулевому начальному значению самой величины φ , $\varphi_{t=+0} = \varphi_0 = \gamma H_p\Delta t$. Простой анализ показывает, что это отклонение φ_0 для реальных параметров импульса не может превышать 10 градусов, что само по себе недостаточно для переориентации. Роль начальной скорости в рамках “механического” уравнения (1) может быть более существенной, так как в этом случае движение вектора \mathbf{l} имеет место и после окончания действия импульса. Если импульс достаточно сильный, то есть $H_p\Delta t$ превышает критическое значение $(H_p\Delta t)_{\text{crit}}$, а величина $[(d\varphi/dt)_0]^2 \geq 2\omega_0^2 w(\varphi_{\text{max}})$, где φ_{max} отвечает максимуму энергии (2), то при движении система

переходит потенциальный барьер и реализуется инерционный механизм спиновой переориентации [5]. В принципе подобная схема переориентации могла бы наблюдаться не только для ортоферрита гольмия, но и для любого антиферромагнетика, в котором имеет место переход первого рода. Однако при исследовании ортоферрита диспрозия, для которого при температуре $T = T_M \simeq 40$ К имеет место переход первого рода [11], переориентации не наблюдалось.

Описанный выше механизм переориентации фактически обусловлен чисто “механической” динамикой вектора \mathbf{l} в рамках уравнения (1). Интересно понять, что произойдет при выходе за рамки этой механической модели. Важно, что даже для материалов типа ортоферритов, обладающих (для использованных в экспериментах [4, 5] длин волн излучения) высокой прозрачностью, невозможно полностью пренебречь поглощением излучения и связанным с ним нагревом образца. Оценки в случае реального эксперимента [4, 5] дают изменение температуры на величину порядка 10 К. В принципе это ничтожно малая величина с точки зрения стандартного (разогревного) механизма воздействия на магнетики, которое обсуждалось в работах [1–3]. Но для переориентационных переходов в ортоферритах эта величина не мала. Она сравнима с шириной области переориентации, которая составляет порядка 15–20 К. Таким образом, изменение температуры спиновой системы ортоферрита можно описать как изменение энергии анизотропии. Для описания этого эффекта надо рассмотреть динамику намагниченности на фоне медленного изменения энергии анизотропии.

Обсудим, что происходит с магнетиком после воздействия импульса поля. Если импульс достаточно сильный, $H_p\Delta t \geq (H_p\Delta t)_{\text{crit}}$, он может сразу перебросить систему в соседнее состояние, в этом случае реализуется процесс, описанный в [5]. Если же величина импульса недостаточна для немедленного переброса, то в системе возбуждаются спиновые колебания, локализованные в яме около $\varphi = 0$. Их амплитуда мала по сравнению с φ_{max} . Далее учтем, что после короткого действия импульса происходит медленная (по отношению к периоду спиновых осцилляций) передача тепла спиновой системе. Нагрев спиновой системы можно описать как медленное (адиабатическое) изменение константы анизотропии $A(t) = A_0(1 - \varepsilon t)$ со временем ($\varepsilon \ll \omega_0$). Таким образом, мы приходим к следующей модели: спиновая динамика эквивалентна колебаниям частицы в медленно меняющемся потенциале $w(\varphi)$. Характер такого изменения показан на рис. 1.

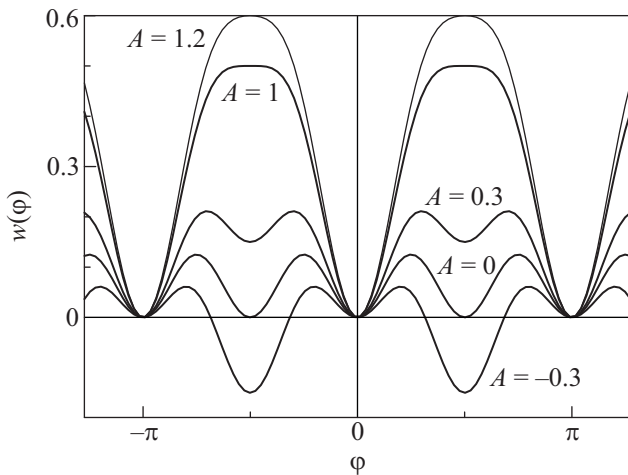


Рис. 1. Изменение энергии анизотропии $w(\varphi)$ вследствие нагрева спиновой системы лазерным импульсом

В принципе неконсервативность задачи сильно усложняет ее анализ. Однако достаточно полное описание спиновой динамики в данном случае можно провести с учетом того, что при медленном изменении вида функции $w(\varphi)$ для механического движения сохраняется значение адиабатического инварианта $I = \oint pdq$. Это утверждение верно для гамильтоновых систем, но приближенно справедливо и при учете достаточно слабого затухания, что проверено численно (см. ниже). Поскольку для антиферромагнетика обобщенный импульс $p \propto d\varphi/dt$, в качестве величины I можно выбрать площадь под кривой на фазовой плоскости $\varphi, d\varphi/dt$. Особым точкам фазовой плоскости отвечает $d\varphi/dt = 0$. Далее мы будем обсуждать только наиболее интересный случай, когда в момент действия импульса ($t = 0$) устойчивой является фаза с $\varphi = 0$, а вторая фаза, с $\varphi = \pi/2$, метастабильна, то есть будем считать, что $0 < A_0 < 1$. В этом случае на плоскости $\varphi, d\varphi/dt$ существуют седловые точки при $\varphi = \varphi_{\max}$, а минимумам потенциала, $\varphi = 0$ и $\varphi = \pi/2$, отвечают особые точки типа центр (при учете затухания они преобразуются в точки типа устойчивый фокус). Для каждой из ям, с $\varphi = 0$ и $\varphi = \pi/2$, существует максимальное значение величин I , I_{crit}^0 и $I_{\text{crit}}^{\pi/2}$, которое формально отвечает площади под сепаратрисной кривой, соединяющей седловые точки через тот или иной минимум. Понятно, что критические значения I_{crit}^0 и $I_{\text{crit}}^{\pi/2}$ зависят от A , то есть медленно меняются со временем. В частности, I_{crit}^0 и $I_{\text{crit}}^{\pi/2}$ стремятся к нулю при $A \rightarrow -1$ и $A \rightarrow 1$ соответственно, а при $1 > A > 0$ значение $I_{\text{crit}}^0 > I_{\text{crit}}^{\pi/2}$ (рис. 2).

Будем считать, что амплитуда импульса не очень велика, то есть в начальный момент времени возбуж-

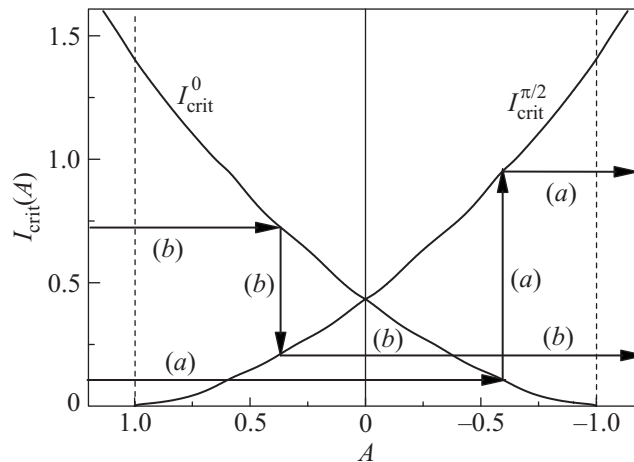


Рис. 2. Зависимости критических значений адиабатического инварианта I_{crit}^0 и $I_{\text{crit}}^{\pi/2}$ от параметра анизотропии A . Стрелками показан характер изменения адиабатического инварианта при изменении A (в области перехода A изменяется от $A = +1$ к $A = -1$). Указаны сценарии перехода от колебаний в яме с $\varphi = 0$ к колебаниям в яме с $\varphi = \pi/2$ с увеличением амплитуды (а), и с уменьшением амплитуды (б)

дается финитное движение в яме с $\varphi = 0$. Если движение финитно, то начальное значение $I(0) < I_{\text{crit}}^0$. Это значение должно сохраняться в процессе эволюции системы до тех пор, пока выполнены условия сохранения адиабатического инварианта, то есть движение достаточно быстрое, $T\varepsilon \ll 1$, где T – период колебания. Однако с течением времени высота барьера $w(\varphi_{\max})$ и критическое значение I_{crit}^0 для потенциальной ямы с $\varphi = 0$ уменьшаются, траектория приближается к сепаратрисе, где $T \rightarrow \infty$, и условие адиабатичности заведомо нарушается. Интересно также отметить, что движение по сепаратрисе является предельно нелинейным, так что тепловая эволюция колебаний приводит к появлению сильно нелинейных режимов спиновой динамики, в частности к росту амплитуд высших гармоник.

Понятно, что после подхода к сепаратрисе колебания уже “не уместаются” в яме с $\varphi = 0$ и должно произойти резкое изменение характера движения (бифуркация). Анализ этого явления представляет достаточно сложную задачу, см. монографии [17, 18]. Во время этой бифуркации поведение колебаний противоположно тому, которое имеет место в адиабатическом режиме. Адиабатический инвариант I резко (по сравнению со временем $1/\varepsilon$) изменяется, а малым изменением энергии можно пренебречь. Если возможен переход к нескольким различным режимам, то характер этого перехода сложно и нерегулярно зависит от начальных условий (движение яв-

ляется квази-стохастическим) и следует говорить о вероятности перехода к тому или иному режиму [18]. В нашем случае возможен переход к колебаниям в ямах с $\varphi = \pi/2$ и $\varphi = -\pi/2$, а также переход через инфинитный режим, когда точка, прежде чем оказаться в яме с $\varphi = \pm\pi/2 + \pi n$, где n – целое число, проходит несколько ям. При учете конечности малой величины ε , а также при наличии конечной диссипации последний режим маловероятен. За то время, пока система впервые проходит область около значения $\varphi = \pm\pi/2$, энергия колебаний уменьшится за счет диссипации. Кроме того, яма успеет углубиться. Поэтому следует ожидать, что реализуется переход к финитному движению в одной из ям, отвечающих $\varphi = \pm\pi/2$. При этом в момент бифуркации величина I меняется от значения I_{crit}^0 к $I_{\text{crit}}^{\pi/2}$ (в тот же момент времени), что представлено стрелками на рис. 2.

Интересно, что конечное значение I может быть как больше, так и меньше начального, см. варианты (a) и (b) на рис. 2. Если начальная амплитуда колебаний вокруг значения $\varphi = 0$ была достаточно большой, переход к колебаниям около $\varphi = \pi/2$ произойдет еще тогда, когда фаза с $\varphi = \pm\pi/2$ является метастабильной, и будет сопровождаться уменьшением амплитуды колебаний. В более интересном случае малой начальной амплитуды колебания остаются в яме с $\varphi = 0$ достаточно долго и при переходе системы к режиму колебаний в потенциальной яме с $\varphi = \pi/2$ их амплитуда существенно вырастет. В последнем случае возрастают как амплитуда изменения φ , так и максимальное значение $d\varphi/dt$. Это существенно для описания наблюдаемых эффектов, поскольку величина $d\varphi/dt$ дает вклад в намагниченность ортоферрита и в магнитооптический отклик. Рост “кинетической энергии”, связанной с $(d\varphi/dt)^2$, компенсируется тем, что колебания теперь происходят в более глубокой потенциальной яме. Численный анализ задачи подтвердил все указанные выше закономерности (рис. 3, 4). Таким образом, даже в том случае, когда амплитуда начального импульсного воздействия на магнетик недостаточна для того, чтобы реализовать чисто динамический инерционный переход в новое состояние, этот переход должен произойти благодаря разогреву спиновой системы магнетика, что можно назвать *нагревно-стимулированным механизмом переориентации*.

Описанное “усиление” спиновых колебаний может быть использовано для реализации динамической переориентации спинов в таких магнетиках, в которых при нагреве происходит переход первого рода, но возбуждение немалых спиновых колебаний в низко-

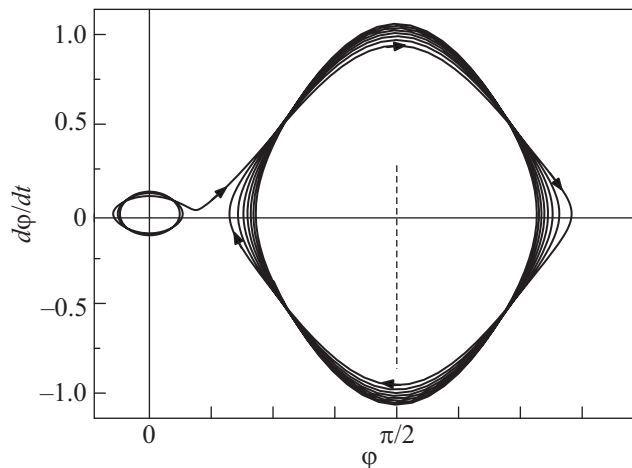


Рис. 3. Фазовая плоскость, построенная на базе численного решения уравнений движения для описания перехода от колебаний в яме с $\varphi = 0$ к колебаниям в яме с $\varphi = \pi/2$, для случая увеличения амплитуды. При расчете выбраны параметры $\varepsilon = 5 \cdot 10^{-3}$ и $\Gamma/\omega_0 = 5 \cdot 10^{-4}$

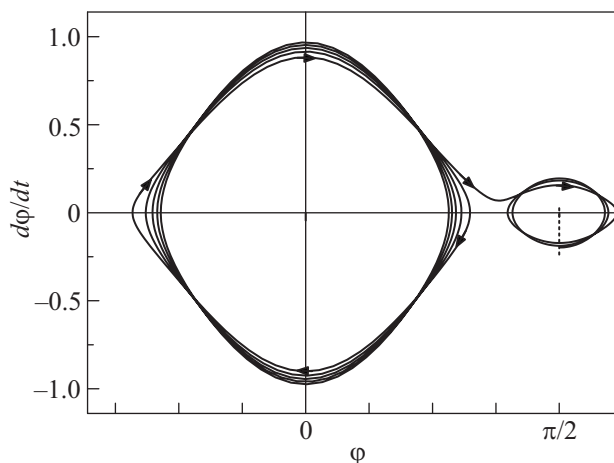


Рис. 4. То же, что на рис. 3, для случая уменьшения амплитуды колебаний

температурной фазе (в отличие от HoFeO_3) затруднительно. В качестве первого примера рассмотрим диспрозиевый ортоферрит DyFeO_3 , в котором при $T = T_M \simeq 39 \text{ K}$ имеет место переориентационный переход первого рода [11]. При повышении температуры вектор антиферромагнетизма \mathbf{l} переходит от оси b (антиферромагнитная фаза Γ_1) к оси a . При этом возникает магнитный момент вдоль оси c (стандартная слабоферромагнитная фаза Γ_4). Динамика вектора \mathbf{l} при переходе описывается решением $\theta = \pi/2$ $\varphi = \varphi(t)$, причем $\varphi(t)$ удовлетворяет тому же уравнению (1) с той же функцией w . Отличие от случая HoFeO_3 состоит в том, что для DyFeO_3 низкотемпературной фазе отвечает $\varphi = \pi/2$, и инерционный

механизм переориентации не реализуется. В качестве другого примера отметим гематит $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, в котором ниже точки Морина $T = T_M \simeq 50\text{ К}$ устойчива антиферромагнитная фаза с вектором \mathbf{l} вдоль главной оси (оси z), а при $T > T_M$ – фаза с \mathbf{l} и слабым магнитным моментом в базисной плоскости xy . Для гематита анизотропия в базисной плоскости пренебрежимо мала и в принципе возможны достаточно сложные (неплоские) режимы движения \mathbf{l} . Однако анализ уравнений сигма-модели показывает, что импульсное магнитное поле возбуждает плоское “полярное” движение вектора \mathbf{l} вида $\theta = \theta(t)$, $\varphi = \varphi_0 = \text{const}$, $\tan \varphi_0 = H_y/H_x$. Характер движения описывается уравнением (1) с заменой $\varphi \rightarrow \theta$ со значением $\Omega_D = 0$, где в величину $\gamma(dH/dt)$ вносит вклад только проекция поля на базисную плоскость.

Итак, в обоих рассмотренных примерах инерционный механизм не работает и можно возбудить только колебания малой амплитуды за счет производной поля [15, 16]. Возможно также использование обратного эффекта Коттона–Мутона с применением импульсов линейно поляризованного излучения [19–21]. Для ортоферритов он особенно эффективен в инфракрасной области спектра, но даже в этом случае трудно ожидать больших начальных значений амплитуды [21]. Описанный выше механизм усиления позволяет надеяться на возможность переориентации в высокотемпературную фазу, если импульс света действует на магнетик в области сосуществования фаз.

Изменение энергии анизотропии вследствие нагрева является неизбежным атрибутом эксперимента по схеме [4, 5]. Вместе с тем этот процесс сложно контролировать. Заметим, однако, что предложенная здесь схема применима для усиления колебаний, возбуждаемых импульсной накачкой, для других динамических систем, параметры которых можно направленно изменять с использованием медленно изменяющегося параметра, синхронизированного с импульсом. Фактически развитая теория применима для усиления колебаний мягкой моды, ответственной за некоторый фазовый переход, магнитный или структурный, связанный не только с повышением температуры, но и с изменением других внешних параметров. Для ферромагнетиков в качестве такого параметра естественно выбрать магнитное поле.

Мы благодарны В.Г. Барьяхтару, А.В. Кимелю, Андрею Кирилюку, Р.В. Писареву, Тео Рейзингу (Theo Rasing) и Такуе Сато (Takuya Satoh) за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке совместной программы РФФИ и НАНУ (грант # 228-11), целевой программы Президиума НАНУ

(# ВЦ/139-38) и государственной программой Украины “Нанотехнологии и наноматериалы” (проект # 225-10).

1. E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
2. A. Scholl, L. Baumgarten, R. Jacquemin, and W. Eberhardt, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5146 (1997).
3. J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, and K. H. Bennemann, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4861 (1997).
4. A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev et al, *Nature* **435**, 655 (2005).
5. A. V. Kimel, B. A. Ivanov, R. V. Pisarev et al, *Nature Physics* **5**, 570 (2009).
6. A. Kirilyuk, A. V. Kimel, and Th. Rasing, *Rev. Mod. Phys.*, **82**, 2731 (2010).
7. L. P. Pitaevskii, *Sov. Phys. JETP* **12**, 1008 (1961).
8. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, М.: Физматлит, 2003.
9. G. P. Vorob'ev, A. M. Kadomtseva, I. B. Krynetskii, and A. A. Mukhin, *JETP* **95**, 1049 (1989).
10. A. M. Balbashov, G. V. Kozlov, S. P. Lebedev et al., *JETP* **95** 1049 (1989).
11. К. П. Белов, А. К. Звездин, А. М. Кадомцева, Р. З. Левитин, *Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках*, М.: Наука, 1979.
12. Е. А. Туров, А. В. Колчанов, В. В. Меньшенин и др., *Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков*, М.: Физматлит, 2001.
13. А. Ф. Андреев, В. И. Марченко, *УФН* **130**, 39 (1980).
14. В. Г. Барьяхтар, Б. А. Иванов, М. В. Четкин, *УФН* **146**, 417 (1985); V. G. Baryakhtar, M. V. Chetkin, B. A. Ivanov, and S. N. Gadetskii, *Dynamics of topological magnetic solitons. Experiment and theory*, Springer Tract in Modern Physics **139**, Springer, Berlin, 1994.
15. А. Ю. Галкин and В. А. Иванов, *Письма в ЖЭТФ* **88**, 286 (2008).
16. T. Satoh, S.-J. Cho, R. Iida et al., *Phys. Rev. Lett.* **105**, 077402 (2010).
17. Г. М. Заславский, Р. З. Сагдеев, *Введение в нелинейную физику. От маятника до турбулентности*, М.: Наука, 1988.
18. А. С. Бакай, Ю. П. Степановский, *Адиабатические инварианты*, Киев: Наук. Думка, 1981.
19. А. М. Kalashnikova, A. V. Kimel, R. V. Pisarev et al., *Phys. Rev. Lett.* **99**, 167205 (2007); *Phys. Rev. B* **78**, 104301 (2008).
20. V. N. Gridnev, *Phys. Rev. B* **77**, 094426 (2008).
21. R. Iida, T. Satoh, T. Shimura et al., *Spectral dependence of photoinduced spin precession in DyFeO₃*, unpublished, arXiv:1009.4743.