

Генерация второй оптической гармоники под действием пикосекундных терагерцовых импульсов в центросимметричном антиферромагнетике NiO¹⁾

А. В. Овчинников⁺, О. В. Чефонов⁺, М. Б. Агранат⁺, К. А. Гришунин^{*}, Н. А. Ильин^{*}, Р. В. Писарев[×],
А. В. Кимель^{*о}, А. М. Калашникова^{×∇2)}

⁺Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

^{*}Московский технологический университет МИРЭА, 119454 Москва, Россия

[×]Физико-технический институт им. Иоффе РАН, 194021 С.-Петербург, Россия

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

[∇]С.-Петербургский государственный университет, 199034 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 4 августа 2016 г.

Обнаружена генерация второй оптической гармоники (ГВГ) на энергии фотона $2\hbar\omega = 2\text{эВ}$ в модельном центросимметричном антиферромагнетике NiO, возникающая под действием пикосекундных импульсов терагерцового излучения (0.4–2.5 ТГц) при комнатной температуре. Экспериментальные результаты и их анализ показывают, что наведенная ГВГ в момент воздействия ТГц импульса связана с электродипольным механизмом взаимодействия электрического поля возбуждающего импульса с электронной подсистемой NiO. Временные изменения ГВГ в течение 7 пс после действия импульса также имеют электродипольную природу и определяются эффектами распространения ТГц импульса в пластине NiO. Индуцированные магнитной компонентой ТГц импульса когерентные осцилляции спинов на частоте антиферромагнитного резонанса приводят к относительно слабой модуляции магнитодипольной ГВГ.

DOI: 10.7868/S0370274X16190012

Резонансное возбуждение электронной, фононной и спиновой систем на пикосекундной временной шкале открывает новые возможности управления состоянием магнитоупорядоченных сред, сегнетоэлектриков и мультиферроиков. Такое возбуждение можно реализовать, используя (суб-)пикосекундные импульсы электромагнитного излучения, спектр которых от сотни ГГц до десятков ТГц перекрывает области собственных магнитных и решеточных резонансов в твердом теле [1–8]. В связи с этим особую актуальность приобретает развитие методик генерации в лабораторных условиях терагерцовых одно- и многопериодных импульсов с напряженностью электрического поля в десятки МВ/см и индукцией магнитного поля в несколько Тесла [9–13]. Использование таких импульсов открывает доступ к сильно нелинейной динамике, индуцированной ТГц импульсами [14].

Изучение динамического отклика среды на воздействие интенсивных коротких ТГц импульсов тре-

бует применения методик, чувствительных к возмущениям, индуцированным электрическим и магнитным полями импульса. Так, динамику магнитной подсистемы, связанную с воздействием магнитной [1, 5] и электрической [15] компонент ТГц импульсов, наблюдали за счет магнитооптического эффекта Фарадея. Имеются сообщения о наблюдении индуцированной ТГц импульсами динамики в релаксорах за счет оптического эффекта Керра [14]. Информация о магнитной и решеточной динамике в среде под действием ТГц импульсов может быть получена на основе анализа вторичного ТГц излучения [2–4]. Метод дифракции рентгеновских импульсов применялся для изучения воздействия электрической компоненты ТГц импульсов на мультиферроики [6] и сегнетоэлектрики [7]. Метод генерации второй оптической гармоники (ГВГ) использовался для детектирования индуцированной импульсной ТГц накачкой динамики электрической поляризации в мультиферроике BiFeO_3 [8]. Следует отметить, что именно ГВГ может стать важным методом зондирования в силу ее высокой чувствительности как к электрической,

¹⁾См. дополнительные материалы к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru.

²⁾e-mail: kalashnikova@mail.ioffe.ru

так и к магнитной симметрии и к их изменениям под внешним воздействием [16]. Чувствительность ГВГ к деталям магнитного упорядочения [17] и ее селективность по отношению к объемным и интерфейсным свойствам [18] может в ряде случаев превосходить другие методики. В связи с этим важным является вопрос об эффективности ГВГ для детектирования высокочастотных когерентных динамических процессов, индуцированных электрическим и магнитным полем однопериодных ТГц импульсов.

В этой работе мы представляем результаты экспериментального исследования отклика centrosymmetric антиферромагнетика NiO на воздействие пикосекундного импульса терагерцового излучения (0.4–2.5 ТГц) методом ГВГ. Одна из ветвей антиферромагнитного резонанса NiO имеет частоту ~ 1 ТГц [19], и ее резонансное возбуждение ТГц однопериодным импульсом было продемонстрировано ранее [1]. В NiO в невозмущенном состоянии наблюдается ГВГ только магнитодипольного типа [20]. Таким образом, NiO представляет собой модельную среду для исследования ГВГ, индуцированной как электрическим полем ТГц импульса, понижающим симметрию кристалла, так и магнитным полем, приводящим к резонансному возбуждению спиновой системы. Мы обнаружили, что индуцированная ГВГ в NiO связана, прежде всего, с воздействием электрического поля ТГц импульса. Это проявляется как в момент его воздействия, так и после, когда динамические изменения ГВГ определяются переотражением и образованием стоячей волны ТГц излучения в образце. Этот электродипольный вклад в ГВГ сравним по величине со спонтанным магнитодипольным вкладом и доминирует над динамической модуляцией последнего, связанной с когерентной прецессией спинов, индуцированной магнитной компонентой импульса.

Оксид никеля NiO кристаллизуется в кубической структуре (точечная группа $m\bar{3}m$); ниже температуры Нееля $T_N = 523$ К он является антиферромагнетиком [21]. Магнитные моменты ионов Ni^{2+} направлены вдоль кристаллографических осей (112) и упорядочены ферромагнитно в плоскостях (111) (рис. 1а). Между соседними плоскостями (111) реализуется антиферромагнитное упорядочение [21, 22]. Сжатие кристаллической решетки вдоль направлений типа [111] приводит к понижению симметрии до $3\bar{m}$ [23] с сохранением центра инверсии в зарядовой и магнитной подсистемах. Небольшое искажение решетки вдоль направлений спинов в плоскостях (111) приводит к дальнейшему понижению симметрии до $2/m$, также сохраняющему центр инверсии.

Монокристаллический образец NiO имел форму плоскопараллельной пластины толщиной 72 мкм с нормалью вдоль оси [001]. Пластина была выращена на подложке MgO методом химического осаждения из газовой фазы с последующим удалением подложки. В общем случае в NiO могут быть реализованы четыре типа антиферромагнитных Г(двойниковых)-доменов, каждый из которых содержит по три S-домена (рис. 1а) [22–24]. Размер антиферромагнитных доменов был порядка 10 мкм и варьировался по образцу [25]. Кроме этого, в образце также имелись однодоменные области размером ~ 200 мкм.

На рис. 1б приведена схема экспериментальной установки для исследования эволюции ГВГ, индуцированной импульсами ТГц излучения. Генерация ТГц импульсов длительностью 1 пс была реализована в нелинейном органическом кристалле ОН1 [12]. Спектр и временной профиль ТГц импульса приведены на рис. 1с. Импульсы ($\mathbf{E}^{THz} \parallel \mathbf{y}$) фокусировались на образец в пятно диаметром 900 мкм параболическим зеркалом с эффективным фокусным расстоянием 76 мм. Для зондирования были использованы импульсы с центральной энергией фотона $\hbar\omega = 1$ эВ, длительностью 110 фс. Импульсы зондирования ($\mathbf{E}^\omega \parallel \mathbf{x}$) фокусировались на образец в пятно 250 мкм. Прошедшее через анализатор (А) излучение ВГ на частоте $2\hbar\omega = 2$ эВ регистрировалось камерой на основе прибора с зарядовой связью (CCD) с усилителем яркости. Ось пропускания анализатора составляла угол α с осью \mathbf{y} . Прошедшее через образец излучение на фундаментальной частоте блокировалось интерференционным фильтром на 620 нм с шириной полосы 10 нм. Исследовались зависимости интенсивности сигнала ВГ $I^{2\omega}$ от угла α и от времени задержки Δt между ТГц импульсами накачки и оптическими импульсами зондирования для фиксированных положений анализатора. Все измерения проводились при температуре $T = 295$ К. Исследовались две ориентации образца $[110] \parallel \mathbf{x}$ и $[\bar{1}10] \parallel \mathbf{y}$. ГВГ в однодоменном состоянии исследовалась при ориентации образца $[110] \parallel \mathbf{x}$. ГВГ в многодоменном состоянии наблюдалась при обеих ориентациях.

Ниже T_N NiO является centrosymmetric, и электродипольная ГВГ в нем запрещена, а магнитодипольная ГВГ разрешена и наблюдается в спектральном диапазоне выше $\hbar\omega = 0.96$ эВ [20], где поглощение обусловлено локализованными переходами между $3d$ -подуровнями ионов Ni^{2+} , расщепленными в кристаллическом поле. Магнитодипольная ГВГ может быть описана тензором нелинейной оптической восприимчивости 3-го ранга $\hat{\chi}^{em}$:

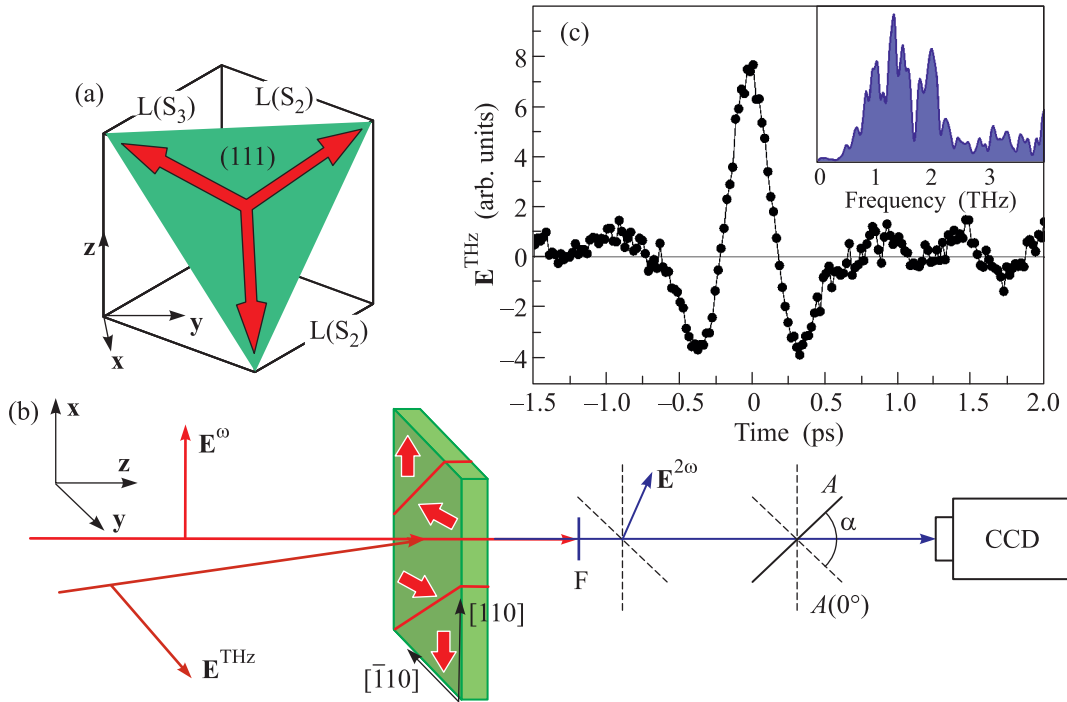


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – 3 антиферромагнитных S-домена в T-домене в NiO (см. [25]). Красными стрелками показаны ориентации антиферромагнитного вектора \mathbf{L} в S-доменах. (b) – Геометрия эксперимента. Оси $[110]$, $[\bar{1}10]$ и $[001]$ кристалла направлены по осям x , y и z лабораторной системы координат. (c) – Временной профиль и спектр (на вставке) ТГц импульса

$$P_i^{2\omega} = \chi_{ijk}^{eem} E_j^\omega H_k^\omega, \quad (1)$$

где $P_i^{2\omega}$ – проекция наведенной электрической поляризации на частоте 2ω на оси лабораторной системы координат, E_j^ω и H_k^ω – проекции напряженности электрического и магнитного полей фундаментальной волны. В рассматриваемой геометрии вклад в ГВГ дают две компоненты χ_{xxy}^{eem} и χ_{xyx}^{eem} тензора, величина которых зависит от того, в каком из 12 антиферромагнитных доменов происходит генерация второй гармоники [25].

В присутствии ТГц импульса в кристалле пропадает центр инверсии, и может наблюдаться индуцированная электрическим полем ГВГ электродипольного типа [26, 27]. Данный процесс можно описать тензором нелинейной восприимчивости 4-го ранга $\hat{\chi}^{eeee}$:

$$P_i^{2\omega} = \chi_{ijkl}^{eeee} E_j^\omega E_k^\omega E_l^{\text{THz}}. \quad (2)$$

В экспериментальной геометрии (рис. 1b) ГВГ связана с компонентой тензора χ_{yxy}^{eeee} [25]. В приближении бездиссипативной среды компоненты тензора $\hat{\chi}^{eem}$ являются чисто мнимыми, а $\hat{\chi}^{eeee}$ – вещественными [26].

В кристалле NiO в присутствии импульса ТГц излучения ожидается появление сигнала ВГ, представ-

ляющего собой когерентную суперпозицию спонтанного магнитодипольного (1) и индуцированного электродипольного (2) вкладов. В этом случае интенсивность ВГ в NiO после прохождения через анализатор A определяется как

$$\begin{aligned} I^{2\omega}(E^{\text{THz}}; \Delta t = 0) = & \\ = & [(\chi_{xxy}^{eem})^2 + (\chi_{yxy}^{eem})^2 + (\chi_{yxy}^{eeee})^2 I^{\text{THz}}] (I^\omega)^2 \times \\ & \times \cos^2 \left(\alpha - \arctg \frac{|\chi_{xxy}^{eem}|}{|\chi_{yxy}^{eem} + \chi_{yxy}^{eeee} E^{\text{THz}}|} \right) + \\ & + [\chi_{yxy}^{eem} \chi_{yxy}^{eeee} E^{\text{THz}} + (\chi_{yxy}^{eem} \chi_{yxy}^{eeee} E^{\text{THz}})^*] (I^\omega)^2 \times \\ & \times \cos^2 \left(\alpha - \arctg \frac{|\chi_{xxy}^{eem}|}{|\chi_{yxy}^{eem} + \chi_{yxy}^{eeee} E^{\text{THz}}|} \right). \quad (3) \end{aligned}$$

Важно заметить, что интерференционное слагаемое (второй член в (3)) отлично от нуля, если компоненты тензоров магнитодипольной $\hat{\chi}^{eem}$ и электродипольной $\hat{\chi}^{eeee}$ восприимчивостей являются комплексными. Это условие выполняется в поглощающей среде [26]. Из выражения (3) следует, что в случае спонтанной ГВГ ($E^{\text{THz}} = 0$) в одном домене ориентация вектора $\mathbf{E}^{2\omega}$ в плоскости поляризации xy определяется отношением компонент $\chi_{xxy}^{eem}/\chi_{yxy}^{eem}$ [25]. В случае суперпозиции спонтанных сигналов ВГ, генерируемых в разных доменах, степень по-

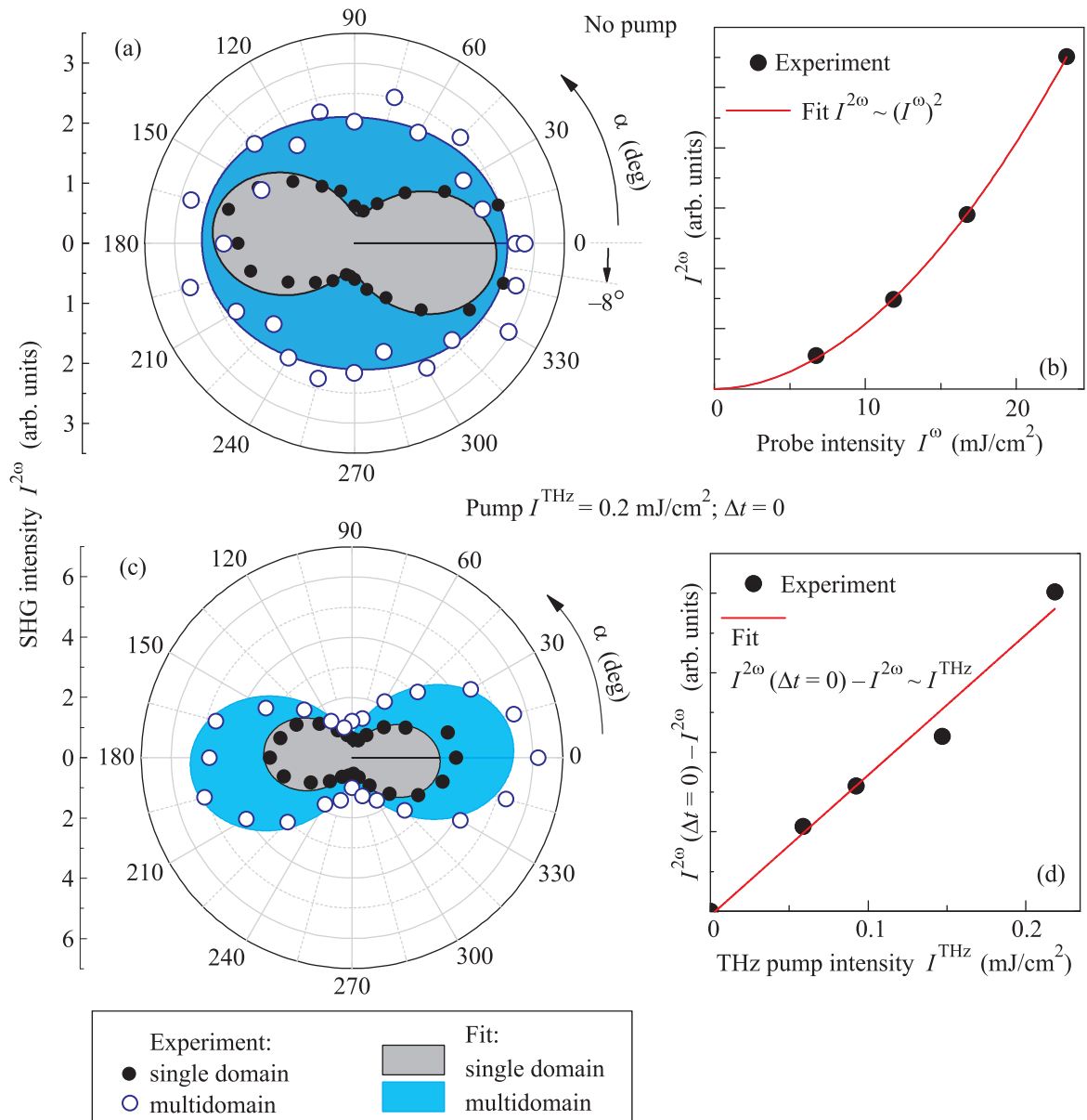


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а), (с) – Экспериментальные азимутальные зависимости интенсивности ВГ в однодоменном (●) и многодоменном (○) состояниях, полученные в отсутствие (а) и в присутствии (с) ТГц импульса накачки ($I^{\text{THz}} = 0.2 \text{ мДж/см}^2$). Интенсивность излучения на фундаментальной частоте составляла $I^\omega = 14 \text{ мДж/см}^2$. Закрашенные области – результат аппроксимации полученных зависимостей с использованием формулы (3). (b) – Экспериментальная зависимость (●) интенсивности ВГ $I^{2\omega}$ в отсутствие импульса накачки от интенсивности излучения на фундаментальной частоте I^ω и ее аппроксимация (линия) функцией $(aI^\omega)^b$, где $b = 1.92 \pm 0.03$. (d) – Экспериментальная зависимость (●) интенсивности индуцированной ВГ $I^{2\omega}(\Delta t = 0) - I^{2\omega}$ от интенсивности накачки I^{THz} и ее аппроксимация (линия) функцией AI^{THz} . Экспериментальные зависимости (с), (d) получены в многодоменном состоянии при положении анализатора $\alpha = 0$

ляризации сигнала должна уменьшаться. Индуцированный сигнал ВГ должен быть поляризован по оси y .

На рис. 2а приведены азимутальные зависимости сигнала спонтанной ВГ ($E^{\text{THz}} = 0$), полученные при

фокусировке преимущественно в один домен и в случае, когда лазерное пятно перекрывает несколько доменов. В первом случае излучение ВГ преимущественно поляризовано вдоль оси y со степенью деполаризации $\sim 20\%$. Заметим, что отклонение $E^{2\omega}$ от

оси y составляет $\sim 8^\circ$, что можно связать с погрешностью ориентации осей кристалла относительно лабораторной системы координат. Во втором случае излучение ВГ существенно деполаризовано со степенью деполаризации 80%. В обоих случаях интенсивность детектируемого сигнала квадратично зависит от интенсивности фундаментального излучения (рис. 2b) в согласии с (1), (3). Анализ приведенных зависимостей на основании выражений (3) и (S4) [25] позволяет сделать следующие выводы. Во-первых, однодоменное состояние соответствует домену типа $T_{2(4)}$, для которого возможно выполнение соотношения $\chi_{xxy}^{em}/\chi_{yxy}^{em} \approx 0$ [25]. Во-вторых, высокая степень деполаризации сигнала ВГ в многодоменном состоянии указывает на то, что компоненты тензора нелинейной восприимчивости интегрально удовлетворяют соотношению $|\chi_{xxy}^{em}| \approx |\chi_{yxy}^{em}|$. На рис. 2a показаны расчетные азимутальные зависимости сигнала ВГ, генерируемого в одно- и многодоменном состояниях.

На рис. 2c приведены азимутальные зависимости ВГ при задержке $\Delta t = 0$ между ТГц импульсом накачки и оптическим импульсом зондирования, полученные в одно- и многодоменном состояниях. В обоих случаях сигнал преимущественно поляризован по оси y , что находится в согласии с симметричным анализом (2), (3). Таким образом, индуцированный электрическим полем ТГц импульса электродипольный вклад в ГВГ оказывается сравним со спонтанным магнитодипольным, что особенно ярко проявляется в многодоменном состоянии. Зависимость индуцированного ТГц импульсом изменения сигнала ВГ от интенсивности ТГц излучения I^{THz} приведена на рис. 2d. Линейный характер этой зависимости указывает на малость интерференционного члена в выражении (3). Это находится в согласии с работами [17, 28, 29], в которых для наблюдения интерференции кристаллографического электродипольного и магнитного вкладов в ВГ требовалась точная подстройка частот фундаментального излучения к оптическим резонансам, ответственным за магнитодипольный вклад. В рассматриваемом случае, хотя поглощение для энергии $\hbar\omega = 1$ эВ составляет $\sim 100 \text{ см}^{-1}$, эта энергия отстроена от области 0.96–0.98 эВ, где наблюдается существенное усиление магнитодипольного вклада за счет резонансов на локализованных $d-d$ переходах [17, 30]. Кроме того, при комнатной температуре эти резонансы существенно уширены.

На рис. 2c приведены результаты аппроксимации экспериментальных азимутальных зависимостей интенсивности ВГ, полученных для одно- и многодо-

менного состояний, выполненной на основе выражения (3) с учетом приведенных выше аргументов. На основании полученных азимутальных зависимостей сигнала спонтанной и индуцированной ВГ в однодоменном состоянии можно оценить соотношение величин некоторых компонент магнитодипольного и электродипольного тензоров $\chi_{xxy}^{eee}/\chi_{yxy}^{em} \approx 10^{-4} \text{ В}^{-1/2} \text{ М}^{1/2}$.

На рис. 3a представлена зависимость интенсивности ВГ от времени задержки Δt между импульсами ТГц накачки и оптического зондирования. Зависимость получена в геометрии, в которой наблюдается наибольший сигнал индуцированной ВГ при $\Delta t = 0$, т.е. в многодоменном состоянии при ориентации поляризатора $\alpha = 0$. После окончания действия ТГц импульса в интенсивности ВГ наблюдается последовательность чередующихся максимумов и минимумов. Временная зависимость интенсивности ВГ в диапазоне $\Delta t = -0.5..0.5$ пс повторяет временную зависимость $(E^{\text{THz}})^2$, что находится в хорошем согласии с зависимостью индуцированной ГВГ от интенсивности импульса накачки (рис. 2d). При временах задержки $\Delta t \approx 1.5$ и 3 пс проявляется усиление ГВГ, повторяющее то, которое наблюдается в момент перекрытия импульсов накачки и зондирования. Оценки показывают, что эти времена соответствуют двух- и четырехкратному преотражению ТГц импульса в пластинке NiO толщиной 72 мкм (рис. 3a) при значении показателя преломления $n = 3$, близком к данным для ряда оксидов [4, 31, 32]. На рис. 3b показаны азимутальные зависимости индуцированной ГВГ, измеренные для нескольких времен задержки Δt , соответствующих локальным максимумам сигнала. Зависимости имеют ту же форму, что и в момент перекрытия импульсов накачки и зондирования, подтверждая тем самым их связь с преотражениями ТГц импульса в образце. На рис. 3c представлен результат преобразования Фурье временной зависимости индуцированной ВГ в диапазоне времен задержки $\Delta t = 2..6$ пс. В полученном спектре наблюдаются широкие полосы около 1, 1.3 и 1.8 ТГц, повторяющие спектральные особенности спектра возбуждающего импульса (рис. 3b), что подтверждает наличие индуцированного преотраженным ТГц импульсом вклада в ВГ.

Во временной зависимости индуцированной ГВГ (рис. 3a) в диапазоне времен задержек до 7 пс также наблюдаются осцилляции с частотой 2.6 ТГц (рис. 3c). Следует отметить, что в возбуждающем ТГц импульсе спектральная плотность на частоте 2.6 ТГц мала. В пластине толщиной 72 мкм с показателем преломления $n = 3$ условие формирования

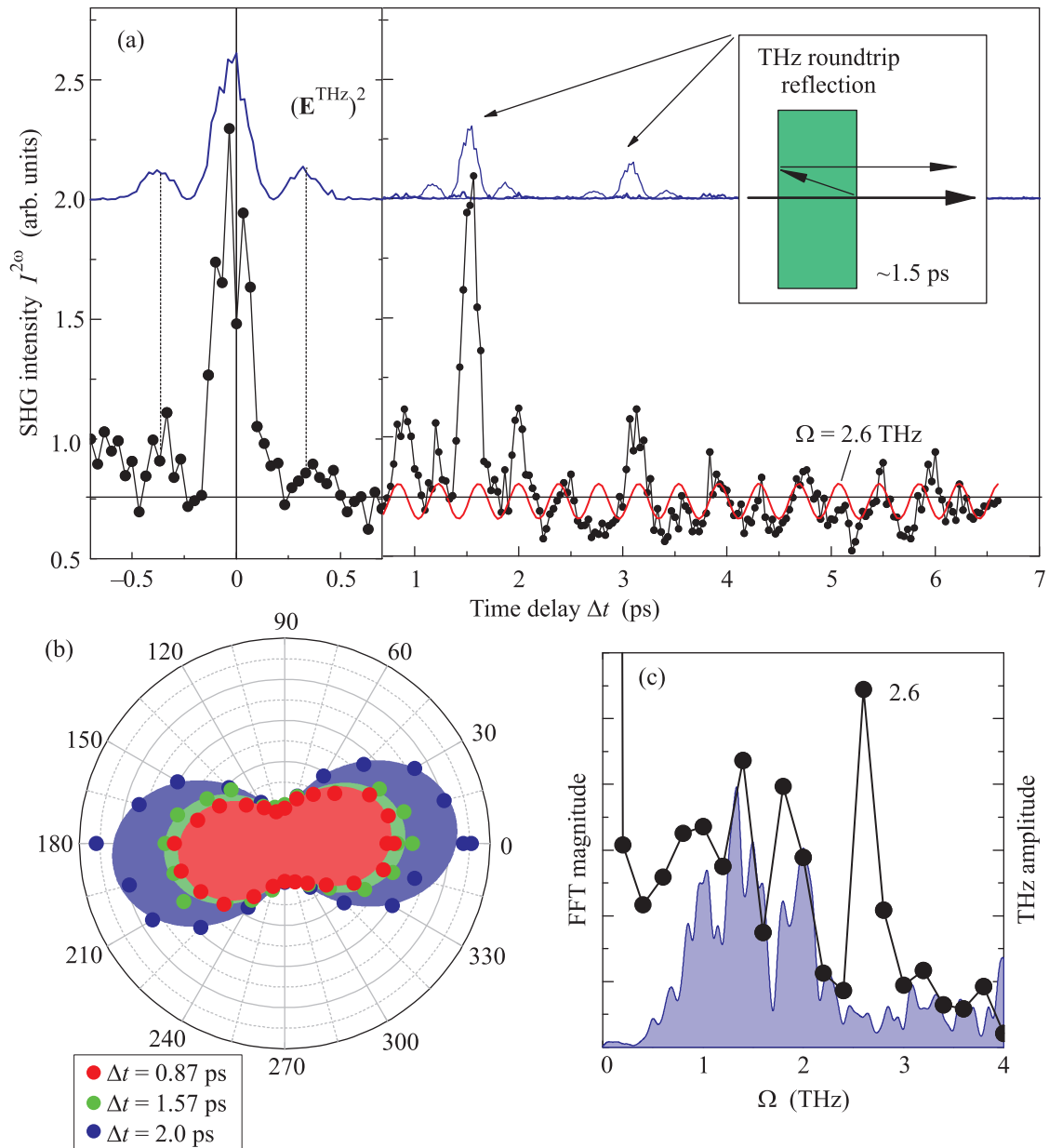


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Зависимость (\bullet) интенсивности ВГ $I^{2\omega}$ от времени задержки Δt между импульсами ТГц накачки и оптического зондирования, измеренная в многоимпульсном состоянии при ориентации анализатора $\alpha = 0$. Интенсивность ТГц накачки составляла $I^{\text{THz}} = 0.2$ мДж/см². Интенсивность излучения на фундаментальной частоте составляла $I^\omega = 14$ мДж/см². Толстая синяя линия – временная зависимость $(E^{\text{THz}})^2$. Тонкими синими линиями показаны переотраженные ТГц импульсы (см. вставку). Сплошная красная линия – гармонические осцилляции на частоте $\Omega = 2.6$ ТГц (см. текст). (b) – Азимутальные зависимости интенсивности ВГ, измеренные для времен задержки $\Delta t = 0.87, 1.57$ и 2 пс. (c) – Результат преобразования Фурье (\bullet) временной зависимости индуцированной ВГ в диапазоне $\Delta t = 2 \dots 6$ пс. Сплошной синей линией показан спектр ТГц импульса

стоячей волны электромагнитного излучения с одним узлом будет выполняться для компонент импульса ТГц излучения с частотой 1.3 ТГц. Выше мы показали, что в нашем эксперименте индуцированная электродипольная ВГ не интерферирует со спон-

танной магнитодипольной ГВГ. В связи с этим стоячая волна излучения с частотой 1.3 ТГц приведет к появлению во временной зависимости интенсивности ВГ вклада, осциллирующего на удвоенной частоте $\Omega = 2.6$ ТГц.

Из приведенного анализа следует, что индуцированная ГВГ в NiO в большой степени связана с воздействием электрического поля ТГц импульса. Рассмотрим теперь возможность появления в индуцированной ВГ вкладов, связанных с воздействием магнитного поля ТГц импульса [33]. Поскольку в спектре импульса есть составляющая на частоте антиферромагнитного резонанса $\Omega \approx 1$ ТГц, магнитное поле может резонансно индуцировать в NiO когерентную прецессию спинов, если вектор напряженности магнитного поля \mathbf{H}^{THz} не параллелен направлению спинов \mathbf{L} [1]. На временной шкале этот процесс описывается уравнением Ландау–Лифшица, в котором роль движущей силы играет временная производная магнитного поля ТГц импульса [34, 35]. В нашем эксперименте вектор магнитной индукции \mathbf{H}^{THz} терагерцового импульса не коллинеарен спинам, лежащим вдоль кристаллографических направлений типа [112], и возбуждение когерентной прецессии спинов разрешено. В случае возбуждения малоугловой прецессии спинов на частоте Ω в тензоре нелинейной восприимчивости появится малая добавка $\hat{\chi}_{ijk}^{em}(\Delta t) = \chi_{ijk}^{em} + \delta\chi_{ijk}^{em} \cos(\Omega\Delta t)$, и, как следствие, индуцированная прецессия должна привести к возникновению двух добавок в интенсивность ВГ:

$$I^{2\omega}(\Delta t) = I^{2\omega} + (\delta\chi_{ijk}^{em})^2 (I\omega)^2 \cos^2(\Omega\Delta t) + 2(\chi_{ijk}^{em} \delta\chi_{ijk}^{em}) (I\omega)^2 \cos(\Omega\Delta t), \quad (4)$$

где первое слагаемое описывает стационарный вклад в ГВГ.

Если рассмотреть тензор $\hat{\chi}_{(S)}^{em}$ в системе координат, связанной с S-доменом (см. рис. S1 в [25]), то малоугловая прецессия на частоте Ω приведет только к появлению новых компонент в этом тензоре, связанных с осциллирующими поперечными компонентами вектора \mathbf{L} . В лабораторной системе координат при ориентации электрического и магнитного полей зондирующих импульсов по осям типа [110], не совпадающим с осями в системе S, возникновение прецессии приводит к модуляции уже имеющихся компонент тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{em}$, и третье слагаемое в выражении (4) оказывается отличным от нуля, т.е. можно ожидать появления во временной зависимости индуцированной ВГ осцилляций на частоте Ω . Рассмотренный здесь случай можно считать аналогом реализованного в [8] гомодинирования ВГ, индуцированной электрическим полем ТГц импульса, за счет спонтанного электродипольного вклада. Другим аналогом является стационарный случай, когда в кристалле разрешена генерация кристаллографической ВГ и ее интерференция с магнитной ВГ позволяет визуализиро-

вать 180°-антиферромагнитные домены [28]. Следует отметить, что третье, интерференционное, слагаемое в (4) будет превосходить второе, квадратичное по малой величине $\delta\chi^{em}$. В нашем случае детектирования посредством второй оптической гармоники, индуцированная прецессия должна проявляться как осцилляции на частоте антиферромагнитного резонанса $\Omega \approx 1$ ТГц [19], и присутствие в спектре индуцированной ВГ (рис. 3с) вклада с такой частотой можно частично связать с возбуждением когерентной спиновой прецессии за счет резонансного взаимодействия магнитного поля ТГц импульса со спиновой подсистемой. Как видно из рис. 3b, резонанс на частоте около 1 ТГц выражен слабо, что, возможно, связано с тем, что рассматривается многодоменное состояние.

Мы показали, что воздействие электрической компоненты пикосекундного однопериодного ТГц импульса (0.4–2.5 ТГц) приводит к динамической потере центра инверсии в центросимметричном с точки зрения кристаллографической и магнитной симметрии антиферромагнетике NiO, что сопровождается снятием запрета на электродипольную ГВГ. Этот процесс имеет место в момент воздействия ТГц импульса и сравним по интенсивности с разрешенным по симметрии процессом спонтанной ГВГ магнитодипольного типа при интенсивности импульса $I^{\text{THz}} = 0.2$ МДж/см². Неожиданным оказалось существование электродипольной ГВГ в течение 7 пс после окончания действия ТГц импульса, что мы связываем с эффектами распространения импульса в образце. Во всем исследованном временном диапазоне электродипольная ГВГ доминирует над слабо выраженной динамической модуляцией магнитодипольной ГВГ, связанной с когерентной прецессией спинов, индуцированной магнитной компонентой ТГц импульса. Следует отметить, что полученные результаты подчеркивают необходимость учета эффектов распространения ТГц импульса в интерпретации результатов оптических экспериментов накачка–зондирование [36].

Экспериментальные исследования выполнены сотрудниками ОИВТ и МИРЭА в ЦКП “ЛФК” ОИВТ РАН при поддержке гранта РФФИ # 16-12-10520. Аналитическая работа выполнена А.М.К. и Р.В.П. при поддержке гранта РФФИ # 15-52-12015.

1. T. Kampfrath, A. Sell, G. Klatt, A. Pashkin, S. Mährlein, Th. Dekorsy, M. Wolf, M. Fiebig, A. Leitenstorfer, and R. Huber, Nature Photon. **5**, 31 (2011).

2. I. Katayama, H. Aoki, J. Takeda, H. Shimosato, M. Ashida, R. Kinjo, I. Kawayama, M. Tonouchi, M. Nagai, and K. Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 097401 (2012).
3. R. Zhou, Z. Jin, G. Li, G. Ma, Zh. Cheng, and X. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 061102 (2012).
4. Z. Jin, Z. Mics, G. Ma, Zh. Cheng, M. Bonn, and D. Turchinovich, *Phys. Rev. B* **87**, 094422 (2013).
5. A. H. M. Reid, Th. Rasing, R. V. Pisarev, H. A. Dürr, and M. C. Hoffmann, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 082403 (2015).
6. T. Kubacka, J. A. Johnson, M. C. Hoffmann et al. (Collaboration), *Science* **343**, 1333 (2014).
7. S. Grübel, J. A. Johnson, P. Beaud et al. (Collaboration), arXiv:1602.05435.
8. F. Chen, J. Goodfellow, S. Liu et al. (Collaboration), *Adv. Mater.* **27**, 6371 (2015).
9. F. Junginger, A. Sell, O. Schubert, B. Mayer, D. Brida, M. Marangoni, G. Cerullo, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Opt. Lett.* **35**, 2645 (2010).
10. C. P. Hauri, C. Ruchert, C. Vicario, and F. Ardana, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 161116 (2011).
11. C. Vicario, B. Monozslai, and C. P. Hauri, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 213901 (2014).
12. C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri, *Opt. Lett.* **39**, 6632 (2014).
13. C. Vicario, M. Jazbinsek, A. V. Ovchinnikov, O. V. Chefonov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, and C. P. Hauri, *Opt. Exp.* **23**, 4573 (2015).
14. H. Y. Hwang, Sh. Fleischer, N. C. Brandt, B. G. Perkins Jr., M. Liu, K. Fan, A. Sternbach, X. Zhang, R. D. Averitt, and K. A. Nelson, *J. Mod. Opt.* **62**, 1447 (2015).
15. S. Baierl, M. Hohenleutner, T. Kampfrath, A. Zvezdin, A. Kimel, R. Huber, and R. Mikhaylovskiy, in *CLEO: QELS Fundamental Science 2016 (Optical Society of America, 2016)*, paper FTu1L.1.
16. M. Fiebig, V. V. Pavlov, and R. V. Pisarev, *J. Opt. Soc. Am. B* **22**, 96 (2005).
17. M. Fiebig, D. Fröhlich, K. Kohn, St. Leute, Th. Lottermoser, V. V. Pavlov, and R. V. Pisarev, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5620 (2000).
18. A. Kirilyuk and Th. Rasing, *J. Opt. Soc. Am.* **22**, 148 (2005).
19. M. Grimsditch, L. E. McNeil, and D. J. Lockwood, *Phys. Rev. B* **58**, 14462 (1998).
20. M. Fiebig, D. Fröhlich, Th. Lottermoser, V. V. Pavlov, R. V. Pisarev, and H.-J. Weber, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 137202 (2001).
21. *Landolt-Börnstein: Numerical Data and Functional Relationships, New Series, Group III*, ed. by K. H. Hellwege and O. Madelung, Springer-Verlag, Berlin (1984), v.17g.
22. M. T. Hutchings and E. J. Samuelsen, *Phys. Rev. B* **6**, 3447 (1972).
23. K. Nakahigashi, N. Fukuoka, and Y. Shimomura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **38**, 1634 (1975).
24. I. Sängler, V. V. Pavlov, M. Bayer, and M. Fiebig, *Phys. Rev. B* **74**, 144401 (2006).
25. См. дополнительные материалы к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru.
26. P. S. Pershan, *Phys. Rev.* **130**, 919 (1963).
27. Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley-Interscience, New Jersey (2003); И. П. Шен, *Принципы нелинейной оптики*, Наука, М. (1989).
28. M. Fiebig, D. Fröhlich, and R. V. Pisarev, *J. Appl. Phys.* **81**, 4875 (1997).
29. M. Fiebig, Th. Lottermoser, D. Fröhlich, A. V. Goltsev, and R. V. Pisarev, *Nature* **419**, 818 (2002).
30. M. Fiebig, Th. Lottermoser, V. V. Pavlov, and R. V. Pisarev, *J. Appl. Phys.* **93**, 6900 (2003).
31. A. Zibold, H. L. Liu, S. W. Moore, J. M. Graybeal, and D. B. Tanner, *Phys. Rev. B* **53**, 11734 (1996).
32. Kh. Z. Rajab, M. Naftaly, E. H. Linfield, J. C. Nino, D. Arenas, D. Tanner, R. Mittra, and M. Lanagan, *J. Micro. and Elect. Pack.* **5**, 101 (2008).
33. В NiO самый низкоэнергетичный оптический фотон с нулевым волновым вектором имеет частоту 11.6 ТГц [W. Reichardt, V. Wagner, and W. Kress, *J. Phys. C* **8**, 3955 (1975)] и не дает вклада в полосы 1–2 ТГц и 2.6 ТГц.
34. А. К. Звездин, А. А. Мухин, Краткие сообщения по физике, **12**, 10 (1981).
35. T. Satoh, S.-J. Cho, R. Iida, Ts. Shimura, K. Kuroda, H. Ueda, Y. Ueda, B. A. Ivanov, F. Nori, and M. Fiebig, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 077402 (2010).
36. R. R. Subkhangulov, R. V. Mikhaylovskiy, A. K. Zvezdin, V. V. Kruglyak, Th. Rasing, and A. V. Kimel, *Nature Photon.* **10**, 111 (2016).