

# Продольная спиновая динамика в фторосиликате никеля

Е.Г. Галкина

*Институт физики НАН Украины, пр. Науки, 46, г. Киев, 03028, Украина*

Б.А. Иванов

*Институт магнетизма НАН Украины, бульв. Вернадского, 36 Б, г. Киев, 03142, Украина*

*Киевский национальный университет им. Тараса Шевченко, пр. Глушкова, 2, г. Киев, 03127, Украина*

E-mail: bivanov@i.com.ua

В.И. Бутрим

*Таврический национальный университет им. В.И. Вернадского, г. Симферополь, 95007, Украина*

Статья поступила в редакцию 28 января 2014 г., опубликована онлайн 21 мая 2014 г.

Наличие одноионной анизотропии приводит к возникновению эффекта квантового сокращения спина. Как следствие, возникает чисто продольная динамика намагниченности, представляющая собой связанные колебания модуля среднего значения спина на узле и квадрупольных средних, построенных на спиновых операторах. Для фторосиликата никеля возможно управление эффектом квантового сокращения спина при изменении давления. Исследование нелинейной продольной спиновой динамики и анализ возможных фотомагнитных эффектов показали, что это соединение — удобный модельный объект для реализации переключения направления намагниченности под действием фемтосекундных лазерных импульсов.

Наявність одноіонної анізотропії призводить до виникнення ефекту квантового скорочення спіна. Як наслідок, виникає чисто подовжня динаміка намагніченості, що є зв'язаними коливаннями модуля середнього значення спіна на вузлі та квадрупольних середніх, побудованих на спінових операторах. Для фторосилікату нікелю можливе керування ефектом квантового скорочення спіна при змінненні тиску. Дослідження нелінійної подовжньої спінової динаміки і аналіз можливих фотомагнітних ефектів показали, що ця сполука є зручним модельним об'єктом для реалізації перемикання напряму намагніченості під дією фемтосекундних лазерних імпульсів.

PACS: 75.10.Jm Квантовые спиновые модели;

75.10.Hk Классические спиновые модели;

**05.45.-a** Нелинейная динамика и нелинейные динамические системы.

Ключевые слова: ферромагнетик, одноионная анизотропия, квантовое сокращение спина, переключение намагниченности, фторосиликат никеля.

## 1. Введение

Большинство работ в области физики магнетизма базируется на феноменологическом подходе, в рамках которого состояние магнетика при низких температурах определяется заданием вектора намагниченности  $\mathbf{M}$  (или векторов намагниченностей подрешеток) практически постоянной длины [1–3]. Однако еще в 1960 году Мория отметил [4], что учет даже слабой одноионной анизотропии приводит к появлению состояний с модулем среднего квантового значения оператора спина на

узле, меньшим единицы,  $|\langle \hat{S} \rangle| < 1$ , что можно назвать эффектом квантового сокращения спина. Материалы, допускающие этот эффект, известны уже достаточно давно. Среди них важно отметить фторосиликат никеля  $\text{NiSiF}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , в котором при приложении давления наблюдался эффект квантового сокращения спина иона никеля со спином  $S = 1$ , вплоть до перехода в немагнитную квадрупольную фазу [5–9]. Исследование этого соединения проводилось в Донецком физико-техническом институте в рамках широкой программы анализа

влияния давления на кооперативные эффекты в твердых телах, прежде всего магнетизм и сверхпроводимость.

Красивые и необычные эффекты квантового сокращения спина долгие годы привлекали внимание исследователей [10–25]. Сейчас существует множество примеров проявления необычных свойств магнетиков, содержащих ионы лантанидов и актинидов, среди которых также имеют место эффекты сокращения спина [26,27]. Такой *необычный магнетизм* (unconventional magnetism) обнаружен не только для кристаллических магнетиков, но и для бозе-эйнштейновских конденсатов атомов с ядерным спином, равным единице [28]. Таким образом, необычный магнетизм, который не укладывается в рамки простого феноменологического подхода с предположением о постоянстве длины намагниченности, продолжает интересовать исследователей. Однако, насколько нам известно, практическая ценность специфических эффектов квантового сокращения спина в течение долгого времени не обсуждалась.

Недавно в работе [29] было предложено использовать такую продольную спиновую динамику, обусловленную квантовым сокращением спина, для реализации сверхбыстрого переключения магнитного момента ферромагнетика с немалыми эффектами квантового сокращения спина. Эти исследования относятся к новой и перспективной области физики магнетизма, получившей название *фемтомагнетизм*, базирующейся на возможности манипулирования намагниченностью магнетиков с помощью фемтосекундных лазерных импульсов [30,31]. В работе [29] указана возможность инерционного переключения спинов под действием лазерного импульса, причем характерное время переключения по порядку величины совпадает со временем обменного взаимодействия (короче пикосекунды). Этот эффект обусловлен исключительно квантовой продольной динамикой спинов. Реализованное экспериментально в работе [32] инерционное переключение спинов для прозрачного антиферромагнетика ортоферрита гольмия  $\text{HoFeO}_3$ , происходит за время порядка периода спиновых колебаний и является обменно-релятивистским [32]. Недавно наблюдался эффект переключения спинов для ферромагнитного сплава  $\text{GdFeCo}$  [33], связанный с продольной эволюцией спинов и обменным взаимодействием [34,35]. Но для этого магнетика время переключения (несколько пикосекунд [33,34]) опять больше чисто обменного времени, поскольку продольная эволюция намагниченности стандартных магнетиков имеет релаксационную природу [36,37]. Это обстоятельство — следствие того, что в силу самой структуры уравнений Ландау–Лифшица для вектора намагниченности  $\mathbf{M}$  динамика модуля намагниченности  $M = |\mathbf{M}|$  исключается. Дело в том, что в рамках уравнения первого порядка по времени две угловые переменные для вектора  $\mathbf{M}$  определяют пару гамильтоновых переменных, при этом ос-

тающееся единственное уравнение первого порядка по времени для намагниченности  $M$  может быть только диссипативным [37]. В работе [29] предложено использование динамических эффектов, не описываемых стандартным замкнутым уравнением для среднего значения спина  $\langle \mathbf{S} \rangle$  или намагниченности  $\mathbf{M} = -2\mu_B \langle \mathbf{S} \rangle$ , где  $\mu_B$  — магнетон Бора. Здесь и далее  $\langle \dots \rangle$  означает как квантовое, так и (при ненулевой температуре) тепловое усреднение физических величин. Описание подобных эффектов требует одновременного учета динамики модуля  $\langle \mathbf{S} \rangle$  и тензорных переменных типа  $S_{ik} = (1/2)\langle S_i S_k + S_k S_i \rangle$ , представляющих собой квантовые средние от операторов, билинейных по компонентам спина. Уникальным свойством фторосиликата никеля является то, что приложение достаточно слабого давления позволяет управлять эффектом квантового сокращения спина в основном состоянии [8,14].

Цель настоящей работы — исследование нелинейного динамического режима «переключения» полного спина фторосиликата никеля  $\text{NiSiF}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  под действием фемтосекундного лазерного импульса в широком интервале давлений. Основное внимание уделяется области вблизи перехода в квадрупольную фазу с нулевым средним значением спина. Обсуждены специфические механизмы воздействия лазерного импульса на спиновую систему этого магнетика.

## 2. Модель для описания квантовой динамики спинов фторосиликата никеля

Гамильтониан фторосиликата никеля включает в себя практически изотропный ферромагнитный обмен и сильную одноионную анизотропию [14]. Для анализа магнитных состояний с учетом изменения знака константы анизотропии его удобно записать, не конкретизируя направление избранной оси кристалла  $\mathbf{e}$ :

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \sum_{n,\delta} J \mathbf{S}_n \mathbf{S}_{n+\delta} + \frac{K}{2} \sum_n (\mathbf{S}_n \mathbf{e})^2, \quad (1)$$

где  $\mathbf{S}_n$  — оператор спина  $S=1$  на узле  $n$ ,  $J > 0$  — константа обменного взаимодействия,  $K$  — константа одноионной анизотропии. Для описания квантовой динамики удобно выбрать единую ось квантования. Выберем эту ось в направлении оси  $z$ , при этом спин  $\langle \mathbf{S} \rangle = \langle S_z \rangle \mathbf{e}_z$ . При атмосферном давлении фторосиликат никеля имеет анизотропию типа легкая ось, что можно описать в рамках (1), считая, что константа  $K < 0$  и ось  $\mathbf{e} = \mathbf{e}_z$ . Как будет показано ниже, более интересным является легкоплоскостное состояние, которое реализуется при давлении  $P > 1,3$  кбар. В этом случае удобно выбрать ось  $\mathbf{e} = \mathbf{e}_x$  и  $K > 0$ , при этом легкой плоскостью является плоскость  $yz$ . Таким образом, для обоих случаев можно считать, что в основном состоянии среднее значение спина параллельно оси  $z$ .

Для описания полного состояния спина  $S = 1$ , в частности эффектов квантового сокращения спина, необходимо использовать  $SU(3)$  когерентные состояния, т.е. полный набор дипольных и квадрупольных спиновых переменных (см. подробнее в [20,25]). В работах по изучению нелинейной динамики намагниченности для подобных систем [13,16,21,22] было показано, что для них существуют два режима динамики: стандартная прецессия спина без изменения его длины и продольная динамика. Для рассмотренных конкретных моделей показано, что эти два режима можно рассматривать независимо. Дополнительным аргументом в пользу такого рассмотрения служит тот факт, что продольная динамика происходит значительно быстрее, чем поперечная, поэтому поперечная динамика не успевает реализоваться за то время, когда продольная эволюция уже закончилась. Анализ появления поперечных отклонений спина, обусловленных «перекачкой» энергии продольных отклонений от равновесия в поперечные, представляет определенный интерес [36], однако такое исследование выходит за рамки данной работы. В дальнейшем будем рассматривать только продольную спиновую динамику.

В рамках подхода, базирующегося на применении  $SU(3)$  когерентных состояний, эволюция системы описывается для каждого спина вектором состояния вида  $|\Psi\rangle = Z_+ | +1\rangle + Z_0 | 0\rangle + Z_- | -1\rangle$ , где  $Z_+, Z_0$  и  $Z_-$  принадлежат комплексному проективному пространству  $CP(2)$ ,  $| +1\rangle, | 0\rangle$  и  $| -1\rangle$  — полный набор состояний для спина  $S = 1$  [13,17,20,23,25]. В рамках этого подхода динамика системы описывается классическими уравнениями Гамильтона для переменных  $Z_+, Z_0$  и  $Z_-$ , функцией Гамильтона является среднее значение гамильтониана системы, вычисленное по состояниям  $|\Psi\rangle$  для всех спинов. Продольной динамике соответствует  $\langle \mathbf{S} \rangle = \langle S_z \rangle \mathbf{e}_z$ , т.е.  $\langle S_z \rangle = s \leq 1$  и  $\langle S_x \rangle = 0, \langle S_y \rangle = 0$ . Следовательно, продольная эволюция спинов описывается в рамках подпространства с  $Z_0 = 0$ , и вектор состояния для спина можно записать в виде  $|\Psi\rangle = Z_+ | +1\rangle + Z_- | -1\rangle$ . Легко показать, что в этом случае компоненты  $S_{xz} = 0$  и  $S_{yz} = 0$ , а величина  $S_{zz}$  тривиальна,  $S_{zz} = \langle S_z^2 \rangle = 1$ . Для легкоосной фазы фторосиликата никеля оператор, описывающий анизотропию, имеет вид  $-(K/2)S_z^2$ . Поэтому в рамках подхода  $SU(3)$  когерентных состояний в этой фазе эффекты сокращения спина, в частности продольная динамика, отсутствуют. В дальнейшем будет рассмотрена только легкоплоскостная фаза.

Для легкоплоскостной фазы продольная динамика в рамках гамильтонова подхода определяется канонически сопряженными переменными, длиной спина  $s = \langle S_z \rangle$  и угловой переменной  $\gamma$ , которая связана с поворотом квадрупольных средних  $\langle S_y^2 - S_x^2 \rangle = \sqrt{1-s^2} \cos 2\gamma$  и

$\langle S_x S_y + S_y S_x \rangle = \sqrt{1-s^2} \sin 2\gamma$  вокруг оси квантования (оси  $z$ ). В терминах переменных  $s, \gamma$  бездиссипативная динамика описывается лагранжианом [29]

$$L = \hbar s \frac{\partial \gamma}{\partial t} - w(s, \gamma). \quad (2)$$

Здесь энергия  $w(s, \gamma)$  определяется формулой

$$w = -\frac{J}{2} s^2 - \frac{K}{4} \sqrt{1-s^2} \cos 2\gamma. \quad (3)$$

Эта энергия, записанная через  $s$  и  $\gamma$ , имеет смысл функции Гамильтона, переменные  $\hbar s$  и  $\gamma$  — канонически сопряженные импульс и координата. Физически это понятно, так как угловая переменная  $\gamma$  определяет поворот в плоскости  $x, y$ , а  $\hbar s$  — момент импульса.

Основному состоянию системы отвечает минимум этой энергии, что соответствует значению  $\gamma = 0, \pi$ , а равновесное значение спина  $s = s_0$ ,

$$s_0 = \sqrt{1-\kappa^2}, \quad \kappa = \frac{K}{4J}, \quad (4)$$

при  $0 < \kappa < 1$ , т.е. при  $0 < K < 4J$ , уменьшено по сравнению с номинальным значением  $s = 1$ . При отрицательных  $K < 0$  значение  $s_0 = 1$ , а при  $\kappa > 1$  реализуется немагнитная квадрупольная фаза  $\langle \mathbf{S} \rangle = 0$ .

Для анализа процесса переключения магнитного момента надо рассматривать динамику намагниченности с учетом затухания. Вопрос о введении диссипативного слагаемого в уравнение для продольной спиновой динамики проанализирован в работе [29]. Используя данные микроскопического анализа диссипации, полученные при достаточно малом  $s_0$  [16], уравнения движения для переменных  $s, \gamma$  при учете диссипации в работе [29] были записаны в виде

$$\hbar \frac{ds}{dt} = -\frac{\partial w}{\partial \gamma} - \lambda(1-s^2) \frac{\partial w}{\partial s}, \quad \hbar \frac{d\gamma}{dt} = \frac{\partial w}{\partial s} - \frac{\lambda}{(1-s^2)} \frac{\partial w}{\partial \gamma}, \quad (5)$$

где  $\lambda \sim 0,2$  — безразмерная релаксационная константа. Эти уравнения описывают уменьшение энергии системы в процессе эволюции. Движения системы после воздействия импульса имеют вид нелинейных затухающих колебаний. Анализ такой динамики удобно провести на фазовой плоскости  $s, \gamma$  (см. разд. 4).

### 3. Возбуждение спиновой динамики лазерным импульсом

Для описания взаимодействия спиновой системы магнетика со светом к гамильтониану системы нужно добавить соответствующие слагаемые  $\Delta w(s, \gamma, t)$ , определяющие различные магнитооптические эффекты (см. обзор [38]). Запишем эту добавку схематически в виде

$$\Delta w(s, \gamma, t) = U_{ik}(s, \gamma) E_i E_k^* + \text{c.c.}, \quad (6)$$

где  $E_i = E_i(t)$  — амплитуда электрического поля света. Конкретный анализ уравнений можно упростить, если учесть, что ширина импульса мала по сравнению с периодом спиновых колебаний. Тогда действие короткого импульса (сейчас используются импульсы короче 100 фс) можно описать, заменив амплитуду поля  $\delta$ -функцией Дирака, записав в формуле (6) для света данной поляризации  $EE^* \rightarrow I\delta(t)$ , где  $I = \int EE^* dt$  определяет суммарную энергию импульса. В этом подходе роль импульса сводится к созданию неравновесного состояния, которое определяет начальные условия в уравнениях движения для намагниченности. После окончания действия импульса спиновая динамика описывается уравнением без вынуждающей силы,  $\Delta w(s, \gamma, t) = 0$ .

В конкретном случае уравнений спиновой динамики, следующих из лагранжиана (2), эти условия можно представить в виде

$$\hbar\gamma(+0) = I \left. \frac{\partial U}{\partial s} \right|_0, \quad \hbar s(+0) = s_0 - I \left. \frac{\partial U}{\partial \gamma} \right|_0, \quad (7)$$

где  $U(s, \gamma)$  — компонента тензорной величины  $U_{ik}(s, \gamma)$ , отвечающая данной поляризации света, индекс 0 показывает, что значения производных берутся при равновесных значениях переменных  $s = s_0$  и  $\gamma = 0$ . Вклад обычных магнитооптических эффектов в создание таких неравновесных начальных условий рассмотрен в работе [29]. Было показано, что, наряду со стандартной редукцией спина, за счет вклада обратного эффекта Фарадея можно создать начальное отклонение квадрупольной переменной  $\gamma(+0) \neq 0$ .

Присутствие начальных отклонений от равновесия для обеих переменных важно для реализации переключения, см. ниже. В связи с этим отметим, что для фторосиликата никеля можно ожидать появления еще одного дополнительного механизма создания таких отклонений. Заметим, что стандартные магнитооптические эффекты можно представить как наведение в среде анизотропии под действием света. Помимо них, возможны эффекты иного типа, не связанные с анизотропией среды. Например, в энергии любой среды симметрия допускает существование изотропного слагаемого вида  $\mathbf{E}^2 \mathbf{M}^2$ , где  $\mathbf{M}$  — намагниченность. Такое слагаемое можно рассматривать как перенормировку обменной константы за счет электрического поля света, но вызванные им оптические эффекты при описании ферромагнетиков обычно не рассматриваются. Однако в середине 80-х годов было показано, что учет эффекта, вызванного этим слагаемым, необходим для описания данных эксперимента по рассеянию света в антиферромагнетиках (см. более детально обзор [38]). Понятно, что при любой симметрии магнетика возможна такая же перенормировка всех констант кристалла, в

нашем случае  $J \rightarrow J(1 + \alpha_J \mathbf{E}^2)$  и  $K \rightarrow K(1 + \alpha_K \mathbf{E}^2)$ , где  $\alpha_J, \alpha_K$  — феноменологические константы. В стандартном одноосном ферромагнетике такие инварианты несущественны, так как они не меняют характер основного состояния магнетика. Но для магнетика типа фторосиликата никеля, в котором значение спина определяется отношением  $K/J$ , при замене  $\mathbf{E}^2 \rightarrow I\delta(t)$  они дают дополнительное отклонение  $\gamma$  от равновесного значения, которое без учета диссипативных слагаемых имеет вид

$$\gamma(+0) = s_0 I_0 \left( \frac{J}{K} \alpha_K - \alpha_J \right), \quad I_0 = \int \mathbf{E}^2 dt. \quad (8)$$

При учете диссипативных слагаемых этот механизм приводит также и к конечной величине  $s(+0) = \lambda \kappa^2 \gamma(+0)$ , т.е. он может обеспечить все условия, необходимые для переключения спинов. Учитывая сильную зависимость константы анизотропии от давления, можно ожидать значительных начальных отклонений, обусловленных константой  $\alpha_K$ .

Обсудим еще один механизм, важный тем, что он дает возможность создавать начальное отклонение модуля спина. Стандартный эффект Коттона–Мутона определяется взаимодействием света со спиновой системой, которое описывается билинейными по намагниченности инвариантами вида  $\alpha_{CM} E_i E_k M_i M_k$ . По аналогии можно рассмотреть взаимодействие линейно поляризованного света с квадрупольными переменными  $S_{ik} = (1/2) \langle S_i S_k + S_k S_i \rangle$ . Это взаимодействие определяет эффект, который можно назвать квадрупольным эффектом Коттона–Мутона (КЭКМ), оно описывается выражением  $\alpha_{QCM} E_i E_k S_{ik}$ . Будем считать, что линейно поляризованный свет распространяется вдоль легкой оси  $z$  и его вектор поляризации лежит в плоскости  $xy$ , составляя с осью  $x$  угол  $\phi$ , т.е.  $E_x = E_0 \cos \phi$ ,  $E_y = E_0 \sin \phi$ . В этом случае взаимодействие определяется компонентами  $S_{ik}$ , где  $i, k = x, y$ . С учетом равенства  $\langle S_z^2 \rangle = 1$  эти величины выражаются через введенные выше переменные  $s$  и  $\gamma$ :

$$2\langle S_y^2 \rangle = 1 + \sqrt{1 - s^2} \cos 2\gamma, \quad 2\langle S_x^2 \rangle = 1 - \sqrt{1 - s^2} \cos 2\gamma,$$

$$\langle S_x S_y + S_y S_x \rangle = \sqrt{1 - s^2} \sin 2\gamma.$$

В результате выражение для энергии взаимодействия нетрудно привести к виду  $\alpha_{QCM} E_0^2 \kappa \cos 2(\phi - \gamma)$ . Используя, как и выше, приближение  $\delta$ -функции, получаем, что линейно поляризованный импульс приводит к отклонению длины спина от равновесного значения

$$s(+0) = s_0 + 2\alpha_{QCM} I_0 \kappa \sin 2\phi. \quad (9)$$

Здесь  $I_0 = \int E_0^2 dt$  и учтено, что в равновесии  $\sqrt{1 - s_0^2} = \kappa$ . Величина  $|s(+0) - s_0|$  максимальна для значений

$\phi = 45^\circ$  и  $135^\circ$ , что типично для стандартного эффекта Коттона–Мутона [38,39]. Важно заметить, что для этих двух оптимальных направлений поляризации знак величины  $s(+0) - s_0$  противоположный. В силу этого, независимо от знака константы  $\alpha_{QSM}$ , воздействие импульса света может не только уменьшать, но и увеличивать значение спина. Насколько нам известно, ранее обсуждалась только возможность редукции полного спина системы, что естественно как для теплового механизма [31], так и для вклада спинзависимого транспорта электронов [40]. Как исключение, можно отметить, что для магнитной системы, содержащей нанослой никеля и железа, наблюдалось увеличение спина в слое железа [41], но реализация таких эффектов затруднительна. Возможность *увеличить* значение спина по сравнению с номинальным под действием импульса света особо важно для переключения намагниченности в материалах типа фторосиликата никеля в области сильной редукции спина в основном состоянии (см. ниже).

Для количественной оценки величин  $\gamma(+0)$  и  $s(+0)$ , связанных как с описанными выше изотропным механизмом и квадрупольным эффектом Коттона–Мутона, так и с рассмотренным ранее [29] стандартным вкладом эффекта Фарадея, необходима более детальная информация о величинах магнитооптических констант фторосиликата никеля, которой мы не располагаем.

#### 4. Анализ продольной эволюции и переключения спинов

Действие короткого импульса света сводится к созданию некоторого неравновесного состояния с  $s = s(+0) \neq s_0$  и  $\gamma = \gamma(+0) \neq 0$ , которое затем развивается в виде затухающих нелинейных колебаний, описываемых системой уравнений (5). Лучшим методом для

описания такой эволюции является метод фазовой плоскости, который наглядно показывает поведение системы при произвольных начальных условиях [42,43]. Общим свойством фазовой плоскости является то, что фазовые траектории не могут пересекаться друг с другом, они могут только соединяться в особых точках — седловых точках и при наличии затухания — в фокусах. В отсутствие затухания фазовые траектории системы определяются уравнением  $w(s, \gamma) = \text{const}$ , т.е. рельефом функции Гамильтона  $w(s, \gamma)$ . Для нашей задачи определяющим является наличие двух различных, но энергетически эквивалентных устойчивых фокусов (центров при  $\lambda = 0$ ) в точках  $s = \pm s_0$ ,  $\gamma = 0$ , отвечающих основному состоянию системы, и стандартной седловой точки при  $s = 0$ ,  $\gamma = 0$ . Как и во многих задачах физики магнетизма, функция Гамильтона  $w(s, \gamma)$  ограничена сверху. Ее максимум расположен в точке  $s = 0$ ,  $\gamma = \pi/2$ , на фазовой плоскости ему отвечает неустойчивый фокус (при  $\lambda = 0$  — центр с обратным направлением движения изображающей точки). В данном случае одна из канонических переменных — угловая переменная  $\gamma$ , значение которой имеет смысл только при ненулевой величине квадрупольного момента  $\sqrt{1-s^2}$ . Поэтому линии  $s = \pm 1$ , ограничивающие фазовое пространство системы, требуют особого анализа. Исследование показало, что на этих линиях при  $\gamma = \gamma_s$  расположены аномальные седловые точки, в которых соединяются линии, определяющие три (а не четыре, как обычно) фазовые траектории, см рис. 1. Далее для конкретности будем обсуждать только линию  $s = 1$ . Среди этих трех траекторий две вертикальные, с  $s = \pm 1$  и различными знаками  $d\gamma/dt$ , а третьей отвечает  $\gamma_s - \gamma \propto \sqrt{1-s}$ . Кроме

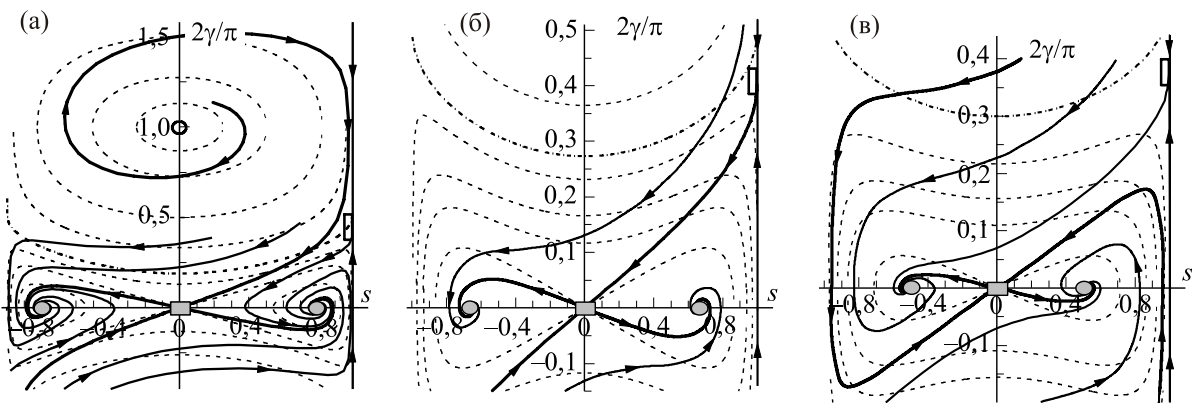


Рис. 1. Фазовая плоскость, представляющая продольные спиновые колебания для различных значений анизотропии:  $\kappa = 0,6$  (а);  $\kappa = 0,765 \approx \kappa^*$  (б);  $\kappa = 0,85$  (в). Штриховые линии (полученные аналитически из условия  $w(s, \gamma) = \text{const}$ ) изображают фазовые траектории без диссипации; сепаратриса, найденная без учета затухания и входящая в нестандартные седловые точки ( $s = 1$ ,  $\gamma = \pi/4$ ), выделена штрихпунктирной линией. Точки минимума энергии ( $s = \pm s_0$ ,  $\gamma = 0$ ) и стандартные седловые точки ( $s = 0$ ,  $\gamma = 0$ ) отмечены соответственно эллипсами и прямоугольниками, заполненными серым цветом. Точка максимума энергии (только на рис. 1 (а)) и нестандартные седловые точки при  $s = 1$ ,  $\gamma = \gamma_s(\lambda)$  отмечены кружком и незаполненными прямоугольниками соответственно. Сплошные линии со стрелками — найденные численно фазовые траектории при учете диссипации; сепаратрисы проведены более толстыми линиями.

того, особенностью этой точки является то, что ее положение  $\gamma_s$  зависит от значения константы диссипации. При  $\lambda = 0$  этой точке отвечает  $s = 1$ ,  $\gamma_s = \pi/4$ , а при конечном  $\lambda$  — величина  $\text{tg } 2\gamma_s = 1/2\lambda$ , т.е. с ростом диссипации эта точка смещается вниз. При  $\lambda = 0,2$  величина  $\gamma_s = 0,379 (\pi/2)$ .

Качественный анализ динамики при наличии затухания можно провести из энергетических соображений, используя тот факт, что фазовая траектория пересекает линии  $w(s, \gamma) = \text{const}$  в направлении уменьшения энергии  $w(s, \gamma)$ . Конкретный вид траекторий может быть найден численно. Сепаратрисы удобно искать, выбирая начальные условия около седловой точки с использованием асимптотик, найденных в линейном приближении, и интегрируя уравнение с обращенным временем. Топология фазовых траекторий определяется взаимным положением различных сепаратрис.

Примем для определенности, что до начала действия импульса система находится в состоянии с  $s = s_0$ ,  $\gamma = 0$ . Импульс света выводит систему из этого состояния в некоторое нестационарное состояние с  $s = s(0)$ ,  $\gamma = \gamma(0)$ , не очень далекое от исходного. Эффект переключения имеет место, если дальнейшая эволюция приводит систему в альтернативное равновесное состояние с  $s = -s_0$ ,  $\gamma = 0$ . Понятно, что здесь определяющую роль играет поведение сепаратрис, входящих в стандартную седловую точку  $s = 0$ ,  $\gamma = 0$ . В работе [29] исследован случай не очень большой анизотропии. Для конкретного анализа были выбраны значения  $\kappa = 0,2$  и  $0,6$ . При этих значениях  $\kappa$  поведение сепаратрисы, входящей в седловую точку при  $s = 0$ , одинаковое: она выходит из максимума энергии (см. рис. 1(а)). Для такой анизотропии переключение возможно только в случае, когда обе переменные,  $s$  и  $\gamma$ , изменяются под действием лазерного импульса. Фактически фазовая плоскость в этом случае разделена на «правую» и «левую» части, для которых эволюция ведет к минимумам с  $s = s_0$  и  $s = -s_0$  соответственно (ср. рис. 4 и 6 из работы [29]). Границы этих областей представляют собой «сепаратрисный коридор», организованный из сепаратрисных линий, которые выходят из различных максимумов. Различия в поведении системы при  $\kappa = 0,2$  и  $0,6$ , найденные в работе [29], фактически сводятся к тому, что квадрупольная переменная  $\gamma$  в процессе переключения совершает неодинаковое число полных оборотов. Кроме того, для данного сценария начальные отклонения обеих переменных,  $s$  и  $\gamma$ , должны быть немалыми. Проведенный анализ показал, что это поведение сохраняется при всех значениях  $\kappa < \kappa_*$ ,  $\kappa_* \approx 0,765$  (рис. 1(б)). В этом случае сепаратриса, входящая в стандартное седло, выходит из максимума, а сепаратриса, выходящая из нестандартного седла, уходит в тот же минимум ( $s = s_0$  на рис. 1(а)). Величина  $\kappa$  может быть немалой для многих материалов, например для  $\text{CsNiF}_3$   $\kappa = 0,3$  [44], известны и ма-

териалы с  $\kappa > 1$  (см. ссылки в [14,17]), но условие  $\kappa \leq 1$ ,  $1 - \kappa \ll 1$  следует считать достаточно экзотическим. Однако для фторосиликата никеля ситуация уникальна: величина  $\kappa$  может эффективно изменяться при разумном изменении давления. Для него  $\kappa = 0,8$ , т.е.  $s_0 = 0,6$  при  $P = 6$  кбар, и  $\kappa \rightarrow 1$  при  $P \rightarrow 10$  кбар. Поэтому имеет смысл рассматривать и значения  $\kappa$ , достаточно близкие к единице. Результаты анализа приведены на рис. 1(б), (в). При  $\kappa = \kappa_* \approx 0,765$  сепаратриса, выходящая из нестандартного седла, входит в стандартное седло. Именно эта линия критическая для переключения: для этого эффекта надо, чтобы начальное возмущение «забрасывало» систему за эту сепаратрисную линию. Поскольку эта критическая линия лежит ниже, чем линии, выходящие из максимума, условие переключения становится менее жестким. Следует подчеркнуть, что это общая тенденция при увеличении анизотропии.

Для значений  $1 > \kappa > \kappa_*$  происходит бифуркационное изменение взаимного расположения сепаратрис: сепаратриса, выходящая из нестандартного седла, лежит выше, чем та, что входит в стандартное седло и определяет переключение. В этом случае зависимость  $\gamma(s)$  на сепаратрисе немонотонная (рис. 1(в)). Здесь условие переключения изменяется качественно: эффект возможен даже без создания начального отклонения квадрупольной переменной от равновесия, при начальном значении  $\gamma(0) = 0$  или даже при  $\gamma(0) < 0$ .

В непосредственной близости от значения  $\kappa \geq \kappa_*$  сепаратриса, входящая в седло при  $s = 0$ ,  $\gamma = 0$ , выходит из максимума, лежащего при  $s = 0$ ,  $\gamma = -\pi/2$ . При дальнейшем увеличении  $\kappa$  поведение этой сепаратрисы усложняется: перед тем, как прийти в седло, она совершает несколько оборотов вокруг системы особых точек «минимум при  $s = -s_0$  — седло — минимум при  $s = s_0$ ». При этом теряется однозначная связь амплитуды начального отклонения величин  $s$  и  $\gamma$  и наличия переключения, и фазовая плоскость разбивается на чередующуюся систему «полос» таким образом, что начальные условия в двух соседних полосах дают эволюцию в два различных (альтернативных) минимума. Поэтому эффект переключения становится более сложным: малые возмущения из исходного минимума релаксируют назад в тот же минимум, при увеличении возмущения имеет место переключение, но при еще большем возмущении эволюция системы снова ведет (после нескольких оборотов вокруг центральной системы особых точек) в исходный минимум. В случае предельно малых значений  $1 - \kappa \ll 1$  энергия в максимуме  $w_{\text{max}} = \kappa$  существенно отличается от энергии седла  $w_{\text{saddle}} = -\kappa$  и основного состояния  $w_{\text{min}} = -\kappa - (1 - \kappa)^2/2$ , которые близки друг к другу. Поэтому наличие максимума несущественно, и в актуальной области  $s \sim s_0 \ll 1$ ,  $\gamma \sim s_0^2 \ll 1$  функция Гамильто-

на (3) с точностью до несущественной аддитивной константы может быть записана в виде

$$w = \frac{1}{8} J(s^2 - s_0^2)^2 + 2J\gamma^2.$$

Это выражение выписано в основном приближении по  $s^2$  и  $\gamma$ , и с принятой точностью по малому параметру  $s_0^2 \sim 1 - \kappa$  в коэффициентах можно положить  $K = 4J$ . Если сделать формальное каноническое преобразование вида  $s \rightarrow q$ ,  $\gamma \rightarrow -p$ , то получается стандартная задача с параболической зависимостью от импульса  $p$  и неограниченным сверху двухъямным потенциалом, пропорциональным  $(q^2 - q_0^2)^2$ . В этом случае имеет место стандартная картина переключения, для которой характерно существование большого числа таких полосок. Точку перехода в немагнитную фазу  $\kappa = 1$  можно трактовать как квантовую критическую точку. Область в непосредственной близости от этой критической точки не очень интересна для проблемы быстрого переключения магнитного момента из-за характерных эффектов критического замедления динамики и релаксации. Видимо, для реализации эффекта переключения оптимальными будут значения  $\kappa \sim 0,7 - 0,9$ , при которых можно использовать все описанные выше варианты создания необходимого начального отклонения.

Таким образом, фторосиликат никеля  $\text{NiSiF}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , в котором более тридцати лет назад исследователями из ДонФТИ был обнаружен эффект квантового сокращения спина иона никеля и возможность управления этим явлением при изменении давления, демонстрирует уникальные эффекты необычного магнетизма, включая нелинейную продольную динамику. Кроме того, для него следует ожидать появления необычных фотомагнитных эффектов, в силу которых под действием фемтосекундного лазерного импульса создается сильнонерасовнованное спиновое состояние, в котором значение намагниченности может быть как больше, так и меньше равновесного. Все это делает фторосиликат никеля уникальным модельным объектом для исследования фотоиндуцированной нелинейной продольной спиновой динамики с возможным переключением направления намагниченности под действием фемтосекундных лазерных импульсов.

Мы признательны В.Г. Барьяхтару за полезные обсуждения. Работа поддержана совместным грантом Российского и Украинского фондов фундаментальных исследований (Ф53.2/045).

1. А.И. Ахиезер, В.Г. Барьяхтар, С.В. Пелетминский, *Спиновые волны*, Наука, Москва (1967).
2. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Издание второе, переработанное и дополненное Е.М. Лифшицем и Л.П. Питаевским, Наука, Москва (1982).
3. Е.А. Туров, А.В. Колчанов, В.В. Меньшенин, И.Ф. Мирсаев, В.В. Николаев, *Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков*, Физматлит, Москва (2001).
4. Т. Moriya, *Phys. Rev.* **117**, 635 (1960).
5. А.А. Галкин, А.Ю. Кожухарь, Г.А. Цинцадзе, *ЖЭТФ* **70**, 248 (1976).
6. А.А. Галкин, В.П. Дьяконов, И.М. Фита, Г.А. Цинцадзе, *ФТТ* **18**, 3489 (1976).
7. А.А. Галкин, И.М. Витебский, В.П. Дьяконов, И.М. Фита, Г.А. Цинцадзе, *Письма в ЖЭТФ* **35**, 384 (1982).
8. В.Г. Барьяхтар, И.М. Витебский, А.А. Галкин, В.П. Дьяконов, И.М. Фита, Г.А. Цинцадзе, *ЖЭТФ* **84**, 1083 (1983).
9. В.П. Дьяконов, Г.Г. Левченко, И.М. Фита, Г.А. Цинцадзе, *ЖЭТФ* **87**, 193 (1984).
10. В.М. Матвеев, *ЖЭТФ* **65**, 1626 (1973).
11. В.В. Вальков, С.Г. Овчинников, *ТМФ* **50**, 466 (1982).
12. А.Ф. Андреев, И.А. Гришук, *ЖЭТФ* **87**, 467 (1984).
13. В.С. Островский, *ЖЭТФ* **91**, 1690 (1986).
14. В.П. Дьяконов, Э.Е. Зубов, Ф.П. Онуфриева, А.В. Сайко, И.М. Фита, *ЖЭТФ* **93**, 1775 (1987).
15. N. Papanicolaou, *Nucl. Phys. B* **305**, 367 (1988).
16. Б.А. Иванов, А.Н. Кичижиев, Ю.Н. Мицай, *ЖЭТФ* **102**, 618 (1992).
17. В.М. Локтев, В.С. Островский, *ФНТ* **20**, 983 (1994) [*Low Temp. Phys.* **20**, 775 (1994)].
18. Yu.A. Fridman and O.A. Kosmachev, *J. Magn. Magn. Mater.* **236**, 272 (2001).
19. A. Zheludev, Z. Honda, C.L. Broholm, K. Katsumata, S.M. Shapiro, A. Kolezhuk, S. Park, and Y. Qiu, *Phys. Rev. B* **68**, 134438 (2003).
20. B.A. Ivanov and A.K. Kolezhuk, *Phys. Rev. B* **68**, 052401 (2003).
21. B.A. Ivanov, R.S. Khymyn, and A.K. Kolezhuk, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 047203 (2008).
22. B.A. Ivanov, A.Yu. Galkin, R.S. Khymyn, and A.Yu. Merkulov, *Phys. Rev. B* **77**, 064402 (2008).
23. J. Bernatska and P. Holod, *J. Phys. A: Math. Gen.* **42**, 075401 (2009).
24. Yu.A. Fridman, O.A. Kosmachev, and P.N. Klevets, *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, 435 (2008).
25. V.G. Bar'yakhtar, V.I. Butrim, A.K. Kolezhuk, and B.A. Ivanov, *Phys. Rev. B* **87**, 224407 (2013).
26. P. Santini, S. Carretta, G. Amoretti, R. Caciuffo, N. Magnani, and G.H. Lander, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 807 (2009).
27. J.A. Mydosh and P.M. Oppeneer, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1301 (2011).
28. Y. Kawaguchi and M. Ueda, *Phys. Rep.* **520**, 253 (2012).
29. E.G. Galkina, V.I. Butrim, Yu.A. Fridman, B.A. Ivanov, and Franco Nori, *Phys. Rev. B* **88**, 144420 (2013).
30. G. Zhang, W. Hubner, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot, *Laser-Induced Ultrafast Demagnetization: Femtomagnetism, a New Frontier?* In: *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures I*, B. Hillebrands and K. Ounadjela (eds.), Topics in Applied Physics **83**, 245, Springer, Berlin (2002).
31. A. Kirilyuk, A.V. Kimel, and Th. Rasing, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2731 (2010).

32. A.V. Kimel, B.A. Ivanov, R.V. Pisarev, P.A. Usachev, A. Kirilyuk, and Th. Rasing, *Nature Phys.* **5**, 727 (2009).
33. I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. Dürr, T.A. Ostler, J. Barker, R.F.L. Evans, R.W. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and A.V. Kimel, *Nature* **472**, 205 (2011).
34. T.A. Ostler, J. Barker, R.F.L. Evans, R. Chantrell, U. Atxitia, O. Chubykalo-Fesenko, S. ElMoussaoui, L. Le Guyader, E. Mengotti, L.J. Heyderman, F. Nolting, A. Tsukamoto, A. Itoh, D.V. Afanasiev, B.A. Ivanov, A.M. Kalashnikova, K. Vahaplar, J. Mentink, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and A.V. Kimel, *Nat. Commun.* **3**, 666 (2012).
35. J.H. Mentink, J. Hellsvik, D.V. Afanasiev, B.A. Ivanov, A. Kirilyuk, A.V. Kimel, O. Eriksson, M.I. Katsnelson, and Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 057202 (2012).
36. В.Г. Барьяхтар, В.И. Бутрим, Б.А. Иванов, *Письма в ЖЭТФ* **98**, 327(2013).
37. В.Г. Барьяхтар, *ЖЭТФ* **87**, 1501 (1984).
38. Б.А. Иванов, *ФНТ* **40**, 119 (2014) [*Low Temp. Phys.* **40**, 91 (1014)].
39. A.M. Kalashnikova, A.V. Kimel, R.V. Pisarev, V.N. Gridnev, A. Kirilyuk, and Th. Rasing, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 167205 (2007); A.M. Kalashnikova, A.V. Kimel, R.V. Pisarev, V.N. Gridnev, P.A. Usachev, A. Kirilyuk, and Th. Rasing, *Phys. Rev. B* **78**, 104301 (2008).
40. M. Battiato, K. Carva, and P.M. Oppeneer, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 027203 (2010); *Phys. Rev. B* **86**, 024404 (2012).
41. D. Rudolf, C. La-O-Vorakiat, M. Battiato, R. Adam, J.M. Shaw, E. Turgut, P. Maldonado, S. Mathias, P. Grychtol, H.T. Nembach, T.J. Silva, M. Aeschlimann, H.C. Kapteyn, M.M. Murnane, C.M. Schneider, and P.M. Oppeneer, *Nat. Commun.* **3**, 1037 (2012).
42. Г.М. Заславский, Р.З. Сагдеев, *Введение в нелинейную физику. От маятника до турбулентности*, Наука, Москва (1988).
43. А.М. Косевич, А.С. Ковалев, *Введение в нелинейную физическую механику*, Киев, Наукова думка (1989).
44. H.-J. Mikeska and M. Steiner, *Adv. Phys.* **40**, 191 (1991).

## Longitudinal spin dynamics in nickel fluorosilicate

E.G. Galkina, B.A. Ivanov, and V.I. Butrim

The existence of single-ion anisotropy leads to the effect of the quantum spin reduction. This gives rise to a purely longitudinal magnetization dynamics, which coupled oscillations of the spin modulus and quadrupole quantum mean values built on the spin operators. For nickel fluorosilicate consists in of the effect of quantum spin reduction may be controlled by changing the pressure. The study of the longitudinal nonlinear spin dynamics and the analysis of possible photomagnetic effects show that this compound is a convenient model object to realize the switching of the magnetization direction under the action of femto-second laser pulses.

PACS: 75.10.Jm Quantum spin models;  
75.10.Hk Classical spin models;  
**05.45.-a** Nonlinear dynamics and nonlinear dynamical systems.

Keywords: ferromagnet, single-ion anisotropy, quantum spin reduction, magnetization switching, nickel fluorosilicate.