

05,09,01

О генерации второй гармоники в неоднородно намагниченных средах

© Е.А. Караштин^{1,2}

¹ Институт физики микроструктур РАН,
Нижний Новгород, Россия

² Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
Нижний Новгород, Россия

E-mail: eugenk@ipmras.ru

Теоретически исследованы новые эффекты генерации оптического сигнала на удвоенной частоте в магнитных средах, распределение намагниченности в которых пространственно неоднородно. Используется подход, основанный на гидродинамическом приближении для описания движения электронов проводимости в поле электромагнитной волны, дополненном уравнениями для среднего спина электронов. В рамках данного подхода продемонстрированы механизмы возникновения эффекта, связанного с тороидным моментом, который был экспериментально обнаружен ранее в системе магнитных частиц с вихревым распределением намагниченности, а также в многослойной магнитной системе (которая является коллинеарной неоднородной магнитной системой). Детально изучен новый эффект, связанный с наличием в неоднородной магнитной системе равновесных спиновых токов. Такой эффект был предсказан из соображений симметрии и может возникать лишь в неколлинеарно намагниченных средах. Показано, что данный эффект имеет резонансный характер с резонансом при частоте накачки, совпадающей с плазменной частотой электронов проводимости. Сделанные оценки восприимчивости на удвоенной частоте для параметров никеля и характерного масштаба изменения намагниченности, равного 10 nm, показывают, что величина восприимчивости вблизи частоты плазменного резонанса составляет при выбранных параметрах порядка 10^{-9} esu, что позволяет надеяться на экспериментальное обнаружение эффекта.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, грант № 16-32-00527.

DOI: 10.21883/FTT.2017.11.45056.15k

1. Введение

Хорошо известно, что при взаимодействии электромагнитной волны со средой генерация сигнала на удвоенной частоте возможна только в случае, если среда является нецентросимметричной [1,2]. При этом центр инверсии может отсутствовать в кристаллической структуре объемного образца (KDP, LiNbO₃ и др. [2,3]). Такие кристаллы находят применение в качестве нелинейных элементов в оптических схемах и используются как для удвоения частоты излучения, так и для выпрямления (например, получение терагерцового импульса с использованием фемтосекундного лазера [4–6]). С другой стороны, нецентросимметричность может достигаться за счет формы образца. Так, хорошо известно, что сигнал на удвоенной частоте появляется при отражении света от границы полупространства, заполненного центросимметричным материалом [7,8]. Нарушение центра инверсии при этом может характеризоваться нормалью к этой границе. Наличие в материале пространственно-однородного спонтанного магнитного момента приводит к появлению новых слагаемых в тензоре восприимчивости [9,10]. Однако, эти слагаемые по-прежнему связаны с нормалью к границе. Если рассмотреть неограниченную однородно намагниченную центросимметричную

среду, в ней эффекта генерации второй гармоники не будет.¹

Другой возможностью реализации отсутствия центра инверсии в среде является центросимметричная магнитная среда, заполняющая все пространство, в которой, однако, намагниченность зависит от координаты и при этом ее пространственное распределение не обладает центром инверсии. В наиболее простом случае векторы намагниченности во всех точках при этом коллинеарны. Возникновение нелинейно-оптического эффекта в такой ситуации приписывается тороидному моменту системы $\mathbf{T} = \int [\mathbf{r} \mathbf{M}] d\mathbf{r}$ (который, вообще говоря, хорошо определен только в случае, когда намагниченность \mathbf{M} , усредненная по пространственным координатам, равна нулю); данный эффект был обнаружен в плоско-слоистой структуре, состоящей из двух ферромагнитных слоев, разделенных немагнитной прослойкой [11]. Для состояния, когда намагниченности слоев параллельны, тороидный момент равен нулю и генерация второй гармоники возможна лишь за счет эффекта на границе отдельных слоев (этот эффект похож на эффект, связанный с тороидным моментом, поскольку нормаль на границе однородно намагниченного материала характеризует неод-

¹ „Слабый“ эффект может возникать из-за того, что распространение электромагнитной волны само по себе нарушает симметрию по отношению к операции инверсии. Очевидно, этот эффект связан с пространственной дисперсией. См., например, [1].

нородность распределения \mathbf{M} на этой границе; однако, эффект, связанный с тороидным моментом, существует и максимален в случае, когда средняя намагниченность равна нулю, и, кроме того, может возникать в неограниченном ферромагнетике). В антиферромагнитном же состоянии магнитная структура системы не имеет центра инверсии и появляется эффект, связанный с тороидным моментом. Аналогичный эффект был зафиксирован в более сложной системе, представляющей собой двумерную решетку ферромагнитных частиц, в которой удалось создать вихревое распределение намагниченности частиц с одинаковым направлением закрученности вихря во всем массиве [12]. Такой линейный по намагниченности эффект может возникать как за счет простой интерференции сигналов от отдельных границ слоев, так и вследствие особенностей движения электронов в неоднородно намагниченной среде (для плоско-слоистой структуры — в случае, если расстояние между ферромагнитными слоями достаточно мало). Механизмы возникновения эффекта в соответствии со вторым из указанных вариантов, который, как нетрудно понять, является единственным при распространении света в бесконечной непрерывной неоднородно намагниченной среде и поэтому представляет особый интерес, рассмотрены в настоящей работе.

Еще один нелинейно-оптический эффект был предсказан с симметричной точки зрения в средах, в которых протекают спиновые токи [13,14]. Они могут быть индуцированы внешним воздействием (например, в полупроводниках [15]) либо присутствовать в состоянии равновесия; в магнитных наноструктурах спиновый ток в состоянии равновесия возможен лишь при неколлинеарном распределении намагниченности [16–21]. Очевидно, что в обменном приближении спиновый ток может быть записан в низшем порядке по намагниченности \mathbf{M} и ее производным в виде $\sigma_{ik} \sim [\mathbf{M}, \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial x_k}]_i$ и является квадратичным по \mathbf{M} . Тензор спиновых токов σ_{ik} меняет знак при операции пространственной инверсии, что делает его удобным для характеристики нецентросимметричности неколлинеарно намагниченных сред. Поляризацию среды на удвоенной частоте, связанную со спиновыми токами, можно записать в виде $P_i^{2\omega} = \beta_{liknm} \sigma_{ik} E_n E_m$ (\mathbf{E} — вектор электрического поля электромагнитной волны). Таким образом, ясно, что наличие спиновых токов в среде приводит к появлению нового вклада в генерацию второй гармоники, пропорционального квадрату намагниченности. Поскольку выражение для поляризации на удвоенной частоте инвариантно по отношению к вращению \mathbf{M} как целого, такой эффект не может быть получен в чисто обменном приближении; для его возникновения необходимо спин-орбитальное взаимодействие. Экспериментально этот эффект в неколлинеарных ферромагнетиках на данный момент не обнаружен. Основные механизмы его возникновения указаны в [22]. В настоящей работе приводится анализ механизмов возникновения указанного эффекта и зависимости его

от некоторых параметров среды и частоты распространяющегося в среде излучения.

Заметим здесь, что если проводить дальнейшее разложение по вектору намагниченности среды, можно получить поляризацию на удвоенной частоте в третьем порядке по \mathbf{M} вида

$$P_i^{2\omega} = \nu_{likmp} \left(\mathbf{M} \left[\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial x_i}, \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x_k \partial x_n} \right] \right) E_m E_p.$$

Такая поляризация может быть получена в обменном приближении. Фотогальванический эффект (а также эффект выпрямления), аналогичный генерации второй гармоники (второго порядка по электрическому полю волны либо высокочастотному току), был ранее рассчитан для магнитного геликоида [23,24]. Однако, можно ожидать, что величина эффекта третьего порядка по намагниченности и содержащего три ее производных, будет мала. Поэтому в настоящей работе мы ограничимся вторым порядком.

2. Теоретическая модель и основные приближения

В рамках настоящей работы считается, что в оптическом диапазоне частот ответственными за отклик среды при распространении в ней электромагнитной волны являются электроны проводимости. Движение электронов проводимости описывается в рамках гидродинамического приближения, в котором уравнения для скорости \mathbf{v} и концентрации n электронов дополнены законом сохранения их среднего спина \mathbf{s} . Система уравнений имеет следующий вид

$$\mathbf{q} = n\mathbf{v} + \alpha_{SH} e_{ijk} \sigma_{ij} \mathbf{e}_k, \quad (1)$$

$$\sigma_{ij} = s_i v_j + A \left[\mathbf{M}, \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial x_j} \right]_i, \quad (2)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \operatorname{div} \mathbf{q} = 0, \quad (3)$$

$$\frac{\partial \mathbf{s}}{\partial t} + \operatorname{div}_r \hat{\sigma} + \frac{[\mathbf{s}, \mathbf{M}(\mathbf{r})]}{\tau_{ex}} + \frac{\mathbf{s} - \mathbf{s}_0}{\tau_s} = 0, \quad (4)$$

$$\frac{\partial \mathbf{q}}{\partial t} + \frac{1}{n} (\mathbf{q}, \nabla) \mathbf{q} = -\frac{en}{m} \mathbf{E} - \frac{en}{m} \mathbf{E}' + \eta_H n [\mathbf{v}, \mathbf{M}] + \eta'_H n [\mathbf{v}, \mathbf{s}] - \frac{e}{mc} [\mathbf{q}, \mathbf{B}] - \frac{\mathbf{q}}{\tau_p}, \quad (5)$$

$$\operatorname{div} \mathbf{E}' = -4\pi e(n - n_0). \quad (6)$$

Здесь \mathbf{q} — средний поток электронов, α_{SH} и η_H — константы спинового и аномального эффектов Холла, η'_H — константа эффекта Холла на собственном среднем магнитном моменте электронов, \mathbf{E} и \mathbf{B} — электрическое и магнитное поля волны, \mathbf{E}' — поле, наведенное волной в среде, $\tau_{ex} = \frac{\hbar}{2J}$ — обменное время (J — обменная константа), τ_p и τ_s — время релаксации импульса и спина,

e и m — заряд и масса электрона, e_{ijk} — антисимметричный тензор Леви–Чивита, \mathbf{e}_k — k -й орт декартовой системы координат. Намагниченность \mathbf{M} считается нормированной на единицу ($|\mathbf{M}| = 1$). Константа η'_H , которая определяет эффект Холла электронов на собственном среднем моменте, не связана со спин-орбитальным взаимодействием и поэтому значительно меньше $\frac{\eta_H}{n_0}$; тем не менее, для полноты картины механизмов возникновения эффектов генерации второй гармоники такой эффект Холла учитывается. В формуле (6) n_0 — равновесная концентрация электронов проводимости; \mathbf{s}_0 в формуле (4) — равновесная плотность спина, $\mathbf{s}_0 = b\mathbf{M}$, где $b = n_0 \frac{J}{\varepsilon_F}$ (ε_F — энергия Ферми). Отметим, что для связи спиновой и пространственной степеней свободы электронов в формулу для тока (1) феноменологически вводится обратный спиновый эффект Холла. Аналогичное слагаемое в формуле для спинового тока (2) опущено, поскольку оно дает поправку второго порядка по константе спинового эффекта Холла. Кроме того, в формулу (2) феноменологически введен равновесный спиновый ток с константой A , который нельзя получить из данной теории.

Мы решаем систему уравнений (1)–(6) в рамках линейного по константам аномального и спинового эффектов Холла (которые имеют спин-орбитальную природу) приближения. Кроме того, считая намагниченность меняющейся медленно по сравнению с межатомным расстоянием в среде, мы пренебрегаем всеми старшими производными \mathbf{M} , оставляя только члены, содержащие первую производную (в первой степени). С другой стороны, мы считаем, что намагниченность меняется быстро по сравнению с длиной электромагнитной волны и пренебрегаем пространственной дисперсией (однако, в уравнении (5) учитывается сила Лоренца в магнитном поле волны; она ответственна за некоторые механизмы генерации второй гармоники, вкладом которых мы затем также пренебрегаем; обсуждение роли таких механизмов приводится ниже). Все величины, входящие в (1)–(6), ищутся в виде разложения по частоте

$$n = n_0 + n^\omega + n^{2\omega} + \dots, \quad (7)$$

$$\mathbf{v} = \mathbf{v}_0 + \mathbf{v}^\omega + \mathbf{v}^{2\omega} + \dots, \quad (8)$$

$$\mathbf{s} = \mathbf{s}_0 + \mathbf{s}^\omega + \mathbf{s}^{2\omega} + \dots, \quad (9)$$

$$\mathbf{q} = \mathbf{q}_0 + \mathbf{q}^\omega + \mathbf{q}^{2\omega} + \dots, \quad (10)$$

$$\hat{\sigma} = \hat{\sigma}_0 + \hat{\sigma}^\omega + \hat{\sigma}^{2\omega} + \dots \quad (11)$$

При этом предполагается, что члены (7)–(11), осциллирующие на частоте ω , пропорциональны первой степени электрического или магнитного поля волны, а члены, осциллирующие на удвоенной частоте, пропорциональны их второй степени. Таким образом, мы пренебрегаем здесь эффектами типа выпрямления, поскольку они лежат за пределами настоящей работы.

Заметим, что n_0 — константа, являющаяся параметром среды, $\mathbf{s}_0 = b\mathbf{M}$, как было указано выше, $(\sigma_0)_{ij} = A \left[\mathbf{M}, \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial x_j} \right]_i$ вводится для электронов проводимости феноменологически. Нулевые (равновесные) скорость и поток, вообще говоря, имеют в данном описании разный смысл, поскольку под скоростью подразумевается нормальная скорость электронов, а поток включает в себя также и спин-орбитальные поправки вроде аномальной скорости. Они зависят от граничных условий. В случае бесконечного ферромагнетика нормальная скорость отсутствует: $\mathbf{v}_0 = 0$. Это соответствует наличию равновесного потока электронов, связанного с равновесным спиновым током

$$\mathbf{q}_0 = \alpha_{SH} A e_{ijk} \left[\mathbf{M}, \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial x_j} \right]_i \mathbf{e}_k, \quad (12)$$

который возникает вследствие, например, спин-орбитального рассеяния на примесях. С таким рассеянием можно связать эффективную силу, действующую на электроны, и ввести эффективное электрическое поле

$$\mathbf{E}_0^{\text{eff}} = -\frac{m\alpha_{SH}A}{en_0\tau_p} e_{ijk} \left[\mathbf{M}, \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial x_j} \right]_i \mathbf{e}_k, \quad (13)$$

которое будет входить в (5). При этом реального электрического поля в данном случае не возникает. Важно понимать, что потери энергии здесь отсутствуют и система является равновесной. Действительно, при протекании такого равновесного тока энергия вследствие упругого рассеяния электронов на примесях переходит из упорядоченного движения в хаотическое, т.е. электронный газ нагревается. Однако, в то же время при образовании потока электронов (12) энергия за счет силы, описываемой эффективным полем (13), переходит из хаотического движения электронов в упорядоченное, что в равновесии в точности компенсирует указанный выше обратный переход энергии. Таким образом, два диссипативных по своей природе процесса приводят к существованию в равновесии потока электронов без нарушения закона сохранения энергии.

В случае ограниченного ферромагнетика в процессе установления равновесия поток электронов приведет к разделению зарядов. Эти заряды создадут электрическое поле, которое компенсирует эффективное поле (13). Среда при этом будет электрически поляризована, в соответствии с предсказаниями [25]. За счет действия на электроны возникшего поля они приобретут нормальную равновесную скорость

$$\mathbf{v}_0 = -\frac{\alpha_{SH}}{n_0} e_{ijk} \left[\mathbf{M}, \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial x_j} \right]_i \mathbf{e}_k,$$

которая компенсирует поправки типа аномальной скорости, и средний поток электронов $\mathbf{q}_0 = 0$.

Поляризация среды на удвоенной частоте $\mathbf{P}^{2\omega}$ легко может быть найдена по формуле

$$\mathbf{P}^{2\omega} = -\frac{e}{2i\omega} \mathbf{q}^{2\omega}. \quad (14)$$

Таким образом, для нахождения отклика среды на удвоенной частоте необходимо вычислить поток электронов на этой частоте $q^{2\omega}$.

3. Генерация второй гармоники неколлинеарно намагниченной системой

3.1. Тороидный момент. Для нахождения вкладов в генерацию сигнала на удвоенной частоте, связанных с тороидным моментом системы, мы вычисляем в рамках описанных выше приближений поток электронов, линейный по намагниченности. Он определяется выражением

$$q_1^{2\omega} = u_1(\mathbf{E}, \text{rot } \mathbf{M})\mathbf{E} + u_2[\mathbf{E}, (\mathbf{E}, \nabla)\mathbf{M}]. \quad (15)$$

Коэффициенты u_1 и u_2 определяются следующими выражениями:

$$u_1 = \frac{\left(\frac{e}{m}\right)^2}{\omega\left(\omega - \frac{\omega_p^2}{\omega} - \frac{i}{\tau_p}\right)^3} \times \left(\left(b\alpha_{SH} \left(i\omega + \frac{1}{\tau_p} \right) \right) - \left(n_0(\eta_H + b\eta'_H) \right) \right), \quad (16)$$

$$u_2 = \frac{-\left(\frac{e}{m}\right)^2}{\omega\left(\omega - \frac{\omega_p^2}{\omega} - \frac{i}{\tau_p}\right)^2} \left(\frac{b\tau_{ex}^2\left(i\omega + \frac{1}{\tau_s}\right)}{\left(1 + \tau_{ex}^2\left(i\omega + \frac{1}{\tau_s}\right)^2\right)} \times \left(\alpha_{SH} + \frac{in_0\eta'_H}{2\omega - \frac{\omega_p^2}{2\omega} - \frac{i}{\tau_p}} \right) + \frac{n_0(\eta_H + b\eta'_H) - ib\alpha_{SH}\left(\omega + \frac{\omega_p^2}{\omega} - \frac{i}{\tau_p}\right)}{\left(\omega - \frac{\omega_p^2}{\omega} - \frac{i}{\tau_p}\right)\left(2\omega - \frac{\omega_p^2}{2\omega} - \frac{i}{\tau_p}\right)} \right). \quad (17)$$

Эффекты, определяемые формулой (15), соответствуют эффектам, которые в [11,12] описываются с помощью тороидного момента. Действительно, в магнитном вихре и тороидный момент, и, например, $\text{rot } \mathbf{M}$ направлены перпендикулярно вихрю и имеют одинаковую симметрию по отношению к операциям пространственной инверсии и обращения времени. Однако, при описании движения электронов (в отличие от средних параметров среды) удобнее пользоваться дифференциальными характеристиками. Заметим, что несмотря на то что, в соответствии с теоремой Стокса, среднее значение $\text{rot } \mathbf{M}$ за счет границ обращается в вихре в ноль, эффект типа (15) не должен пропадать, поскольку электроны проводимости движутся внутри объема материала и граница может на них

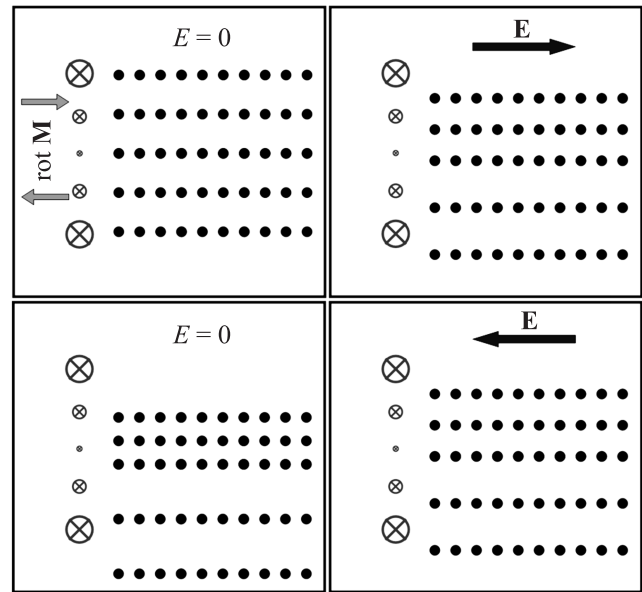


Рис. 1. Поперечные осцилляции электронов проводимости в среде с неоднородной намагниченностью. Показаны положения электронов в моменты времени, соответствующие разным фазам поля.

влиять лишь за счет отражения, т.е. существенно иным способом.

Механизмов возникновения линейных по намагниченности эффектов довольно много. Во-первых, аномальный эффект Холла, возникающий при осцилляции электронов в электрическом поле волны, приводит к смещению их в поперечном направлении. В неоднородно намагниченной среде величина этого смещения зависит от локальной намагниченности, что приводит к появлению пространственно-неоднородной концентрации электронов, осциллирующей на частоте волны. Совместно с колебаниями электронов в поле волны это дает ток на удвоенной частоте, который определяется коэффициентом u_1 (второе слагаемое в правой части (16)). Данный механизм как один из самых простых проиллюстрирован на рис. 1. Из рисунка видно, что в результате аномального эффекта Холла в неоднородно намагниченной среде возникает осциллирующая плотность электронов. Второй механизм также связан с появлением неоднородной концентрации электронов, но возникает в результате переноса спина осциллирующими электронами. Такой поток спина конвертируется в неоднородный электрический ток (на частоте волны) за счет спинового эффекта Холла. Неоднородность этого тока, возникающая из неоднородности спиновой поляризации, и приводит к возникновению неоднородности концентрации электронов, колеблющейся на частоте волны. Это дает вклад в u_1 , определяющийся первым слагаемым в правой части (16). В-третьих, „адиабатический“ перенос спина движущимися в поле волны спин-поляризованными электронами приводит к возникновению потока спина

на удвоенной частоте, который затем конвертируется в электрический ток посредством спинового эффекта Холла. Это дает вклад в u_2 , который определяется первым слагаемым, пропорциональным α_{SH} , в правой части (17). Еще один механизм связан с возникновением пространственно-неоднородной скорости электронов на частоте ω из-за аномального эффекта Холла, которая, в свою очередь, приводит к ненулевой конвективной производной от скорости и, как следствие, к появлению скорости на удвоенной частоте. Этот механизм дает вклад в u_2 в виде слагаемого, содержащего $n_0(\eta_H + b\eta'_H)$, в правой части (17). Экранировка, описываемая уравнением (6), приводит к возникновению резонансов на частоте ω_p и $\frac{\omega_p}{2}$ и, кроме того, является причиной возникновения второго слагаемого, содержащего α_{SH} , в правой части (17). Эффект Холла на собственном магнитном моменте электронов дает, во-первых, поправку к константе аномального эффекта Холла и, во-вторых, являясь сам по себе механизмом возникновения нелинейности в уравнении (5), приводит к возникновению дополнительных скорости и потока электронов на удвоенной частоте, которые дают слагаемое, содержащее $n_0\eta'_H$, в правой части (17).

Для оценки величины эффекта, определяемого формулой (15), и сравнения разных механизмов его возникновения, будем использовать следующие материальные параметры (по умолчанию, если не указано иное). В качестве ферромагнитного материала выбран никель. Обменная константа составляет $J = 0.25 \text{ eV}$ [26], откуда следует $\tau_{ex} = 1.3 \cdot 10^{-15} \text{ s}$. При этом времена релаксации импульса и спина выбираются равными $\tau_p = 10^{-14} \text{ s}$, $\tau_s = 10^{-13} \text{ s}$. Энергия Ферми $\varepsilon_F = 4.3 \text{ eV}$, равновесная плотность электронов $n_0 \approx 4.1 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$. Намагниченность насыщения никеля $M_s = 520 \text{ Gs}$ [28]. Угол аномального эффекта Холла составляет по порядку величины $\alpha_H \sim 10^{-2}$ [26,28], что позволяет оценить величину константы $\eta_H = \frac{\alpha_H}{\tau_p} \sim 10^{12} \text{ s}^{-1}$. Константа эффекта Холла на собственном магнитном моменте электронов имеет другую размерность, поскольку величина s введена как плотность (безразмерного) спина. Ее можно оценить из силы Лоренца: $n_0\eta'_H \sim 0.9 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$. Данная величина на два порядка меньше константы аномального эффекта Холла. Угол спинового эффекта Холла для Ni, в соответствии с [29], $\alpha_{SH} = 0.076$.

На рис. 2, *a* показана зависимость от частоты модулей u_1 и u_2 . Во всем диапазоне частот $|u_2|$ больше, чем $|u_1|$. Исключение составляет область резонанса при ω_p , где они сравнимы. Для u_2 хорошо видны три резонансных пика: при τ_{ex}^{-1} , при $\frac{\omega_p}{2}$ и при ω_p (в порядке увеличения частоты). Максимальная величина, существенно превосходящая другие, наблюдается при ω_p . Рис. 2, *b* содержит зависимость двух вкладов в u_1 (см. формулу (16)) от частоты. Хорошо видно, что слагаемое, связанное со спиновым эффектом Холла, во всем диапазоне частот заметно превосходит вклад от аномального эффекта Холла. На рис. 2, *c* показана

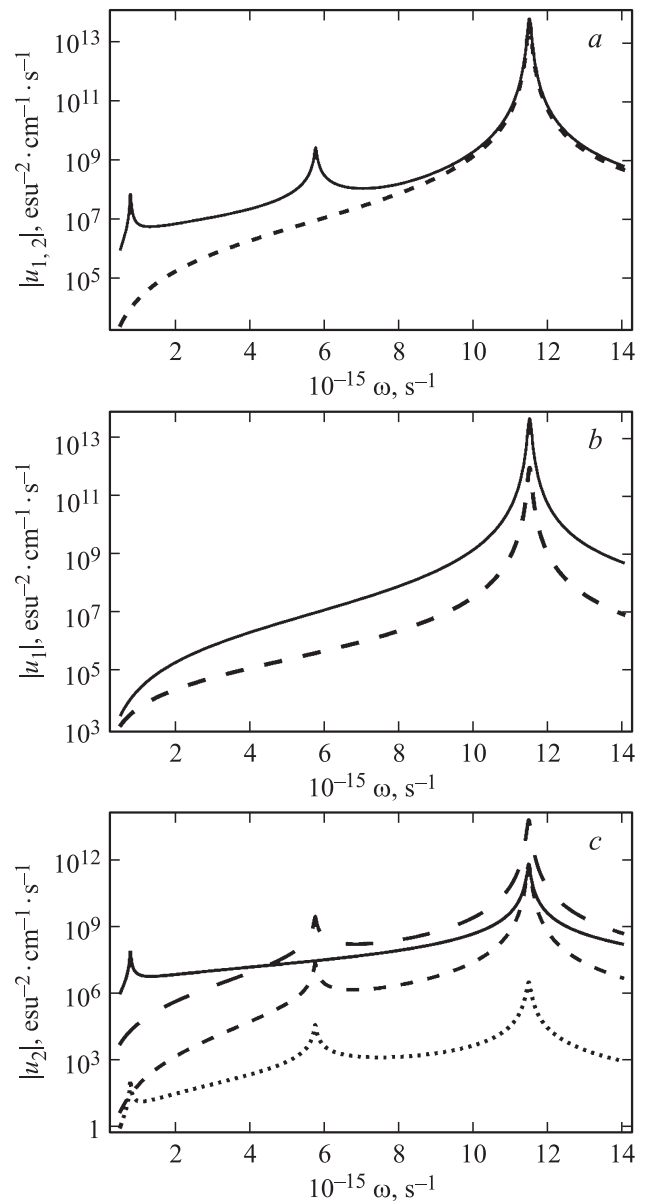


Рис. 2. Зависимость от частоты (а) модулей u_1 (штриховая линия) и u_2 (сплошная линия); (b) модулей вкладов в u_1 (сплошная линия — первое слагаемое в правой части (16), штриховая линия — второе слагаемое в правой части (16)); (c) модулей вкладов в u_2 (сплошная линия — первое слагаемое с α_{SH} в правой части (17), штриховая линия (длинный штрих) — второе слагаемое с α_{SH} в правой части (17), штриховая линия (короткий штрих) — слагаемое, содержащее $n_0(\eta_H + b\eta'_H)$, в правой части (17), пунктирная линия — слагаемое, содержащее $n_0\eta'_H$, в правой части (17)).

зависимость от частоты четырех слагаемых в u_2 (формула (17)). Видно, что механизм, связанный с эффектом Холла на собственном магнитном моменте электронов, существенно меньше других слагаемых. Вклад, связанный с аномальным эффектом Холла, также мал во всем диапазоне частот по сравнению со слагаемыми, связанными со спиновым эффектом Холла. При низких

частотах (резонанс при τ_{ex}^{-1} и в окрестности этой точки) величина w_2 определяется механизмом, возникающим в результате „адиабатического“ переноса спина (первое слагаемое с α_{SH} в (16)). С увеличением частоты растет вклад от механизма, связанного с экранировкой неоднородной плотности электронов (второе слагаемое с α_{SH} в (16)), и этот механизм является доминирующим в окрестностях $\frac{\omega_p}{2}$ и ω_p . При частоте, заметно превышающей ω_p , максимальный вклад дает опять механизм, связанный с „адиабатическим“ переносом спина (не показано на рис. 2, *c*). Таким образом, можно сделать вывод, что наиболее существенными при параметрах реальных материалов являются механизмы, связанные со спиновым эффектом Холла.

3.2. Спиновый ток. Для того, чтобы получить эффект генерации второй гармоники, связанный со спиновым током в системе, найдем поток на удвоенной частоте второго порядка по намагниченности. Вычисления показывают, что он имеет вид

$$\mathbf{q}_2^{2\omega} = w_1 [\mathbf{E}, [\mathbf{M}, (\mathbf{E}, \nabla)\mathbf{M}]] + w_2 \left[\left[\left(e_{ijk} \left[\mathbf{M}, \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial x_j} \right]_i \mathbf{e}_k \right), \mathbf{V} \right], \mathbf{V} \right], \quad (18)$$

где w_1 и w_2 определяются выражениями

$$w_1 = \frac{-\left(\frac{e}{m}\right)^2 \tau_{ex} b}{\left(1 + \left(i\omega + \frac{1}{\tau_s}\right)^2 \tau_{ex}^2\right) \left(\omega - \frac{\omega_p^2}{\omega} - \frac{i}{\tau_p}\right)^2} \times \left(\alpha_{SH} + \frac{in_0\eta'_H}{2\omega - \frac{\omega_p^2}{2\omega} - \frac{i}{\tau_p}} \right), \quad (19)$$

$$w_2 = \frac{-\left(\frac{e}{m}\right)^2 \alpha_{SH} A}{c^2 \left(\omega - \frac{\omega_p^2}{\omega} - \frac{i}{\tau_p}\right) \left(2\omega - \frac{\omega_p^2}{2\omega} - \frac{i}{\tau_p}\right)}. \quad (20)$$

Выражение (20) получено для случая бесконечного ферромагнетика, в котором имеется \mathbf{q}_0 , заданный формулой (12). Он возникает из силы Лоренца, действующей на поток электронов в магнитном поле волны (во втором порядке). Поскольку кроме малой константы, связанной со спин-орбитальным взаимодействием, данный вклад содержит малый параметр $\left(\frac{v}{c}\right)^2$ (v — характерная скорость электронов), он должен быть мал по сравнению с первым слагаемым в (18), которое определяется коэффициентом (19). Это слагаемое возникает в результате появления у электронов „неадиабатического“ спина на частоте ω при движении в поле волны, связанного с тем, что в неколлинеарной среде спин при смещении электронов прецессирует вокруг локального магнитного момента. Совместно со скоростью на частоте волны этот спин приводит к возникновению спинового тока на удвоенной частоте, который затем конвертируется в

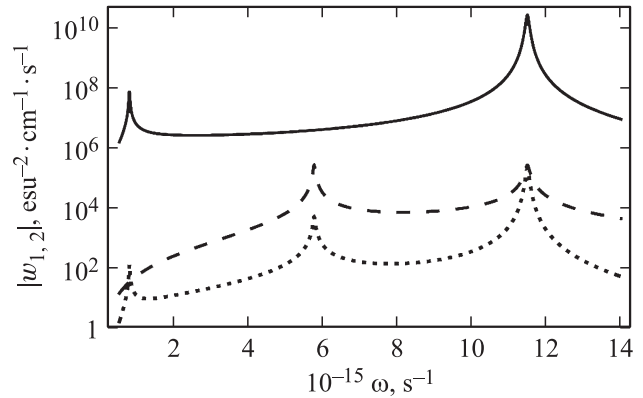


Рис. 3. Зависимость модуля w_1 , первое (сплошная линия) и второе (пунктирная линия) слагаемые в (19), а также модуля w_2 (штриховая линия) от частоты для параметров никеля.

электрический с помощью обратного спинового эффекта Холла. Данный механизм описан в [22]. Заметим, что аномальный эффект Холла не дает вклада в эффекты второго порядка по намагниченности, в отличие от эффекта Холла на собственном магнитном моменте электронов. Это связано с тем, что мы ограничиваемся линейными по η_H и α_{SH} слагаемыми. В то же время, эффект Холла на спине электронов дает дополнительную нелинейность. В результате спин электронов и их скорость, осциллирующие на частоте ω , порождают скорость на частоте 2ω , что приводит к возникновению тока на этой частоте.

Для оценки и количественного сравнения разных вкладов в (18) воспользуемся, как и ранее, параметрами никеля. Константу A , определяющую величину равновесного спинового тока, можно оценить так, как это сделано для константы флексо-магнитоэлектрического эффекта в работе [31]: $A \approx 2 \cdot 10^{22} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-1}$.

На рис. 3 показаны зависимости модулей первого и второго слагаемых в (19), а также модуля выражения (20) от частоты волны. Видно, что оба слагаемых в (19) имеют относительно небольшой по абсолютной величине резонанс на частоте τ_{ex}^{-1} и значительный резонанс на ω_p . Кроме того, второе слагаемое также имеет резонанс на $\frac{\omega_p}{2}$. Величина w_2 имеет резонансы лишь на ω_p и $\frac{\omega_p}{2}$. Сравнение кривых на рис. 3 показывает, что действительно вклад второго слагаемого в w_1 , связанного с эффектом Холла на собственном магнитном моменте электронов, существенно (примерно на пять порядков) меньше, чем вклад первого слагаемого в (19). Поэтому этот эффект можно не учитывать. Кроме того, видно, что величина w_2 также существенно меньше, чем w_1 . Это подтверждает рассуждения о малости данного вклада, который также можно не учитывать. Нетрудно видеть, что увеличение времени релаксации импульса τ_p приводит к квадратичному росту обоих слагаемых в (19) в резонансе, в то время, как ве-

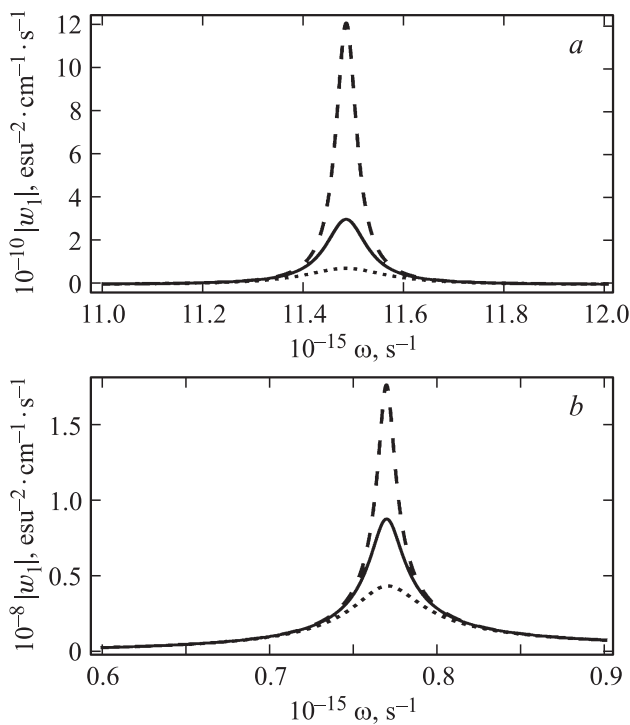


Рис. 4. Зависимость модуля w_1 от частоты (a) в окрестности плазменного резонанса для $\tau_p = 10^{-14} \text{ s}$ (сплошная линия), $\tau_p = 2 \cdot 10^{-14} \text{ s}$ (штриховая линия), $\tau_p = 0.5 \cdot 10^{-14} \text{ s}$ (пунктирная линия); (b) в окрестности обменного резонанса $\tau_s = 10^{-13} \text{ s}$ (сплошная линия), $\tau_s = 2 \cdot 10^{-13} \text{ s}$ (штриховая линия), $\tau_s = 0.5 \cdot 10^{-13} \text{ s}$ (пунктирная линия). Другие параметры соответствуют никелю.

личина (20) растет линейно. Обменный резонанс на частоте τ_{ex}^{-1} растет с увеличением времени релаксации спина τ_s одинаково для обоих слагаемых в (19). Таким образом, можно сделать вывод о том, что для реальных параметров достаточно ограничиться первым слагаемым в w_1 (формула (19)), определяемым спиновым эффектом Холла, и пренебречь всеми другими механизмами, дающими вклад в (18).

На рис. 4 представлена зависимость модуля w_1 от частоты для разных значений времени релаксации. Как и следовало ожидать, с увеличением τ_p величина эффекта на частоте ω_p растет (рис. 4, a). При этом величина τ_p практически не влияет на резонанс на частоте τ_{ex}^{-1} . С другой стороны, величина τ_s не влияет на резонанс на плазменной частоте; при этом увеличение τ_s приводит к росту $|w_1|$ в области резонанса при τ_{ex}^{-1} (рис. 4, b). На рис. 5 показана величина модуля w_1 для разных материалов (никель, пермаллой, кобальт, железо). Для каждого из материалов наблюдается два резонанса: небольшой по амплитуде при τ_{ex}^{-1} и значительный при ω_p . Величина резонанса при ω_p близка по величине для всех материалов: отношение максимальной величины ($|w_1| \approx 2.2 \cdot 10^{11} \text{ esu}^{-1} \text{cm}^{-1} \text{s}^{-1}$) в кобальте к минимальной в никеле составляет порядка 10. Величина

эффекта в кобальте максимальна, поскольку величина обменной константы J в кобальте заметно больше, чем в никеле. При этом угол спинового эффекта Холла в кобальте, хоть и меньше, чем в никеле, но больше, чем в других материалах.

Оценим величину нелинейной восприимчивости для никеля (отношения модуля поляризации на удвоенной частоте к квадрату поля волны на основной частоте) в резонансе ($\omega = \omega_p$). Для этого возьмем характерный масштаб неоднородности намагниченности $L_M \approx 10 \text{ nm}$ (такую неоднородность представляется реальным создать наноструктурированием материала). Подставляя параметры никеля и выбранный масштаб в формулы (18)–(20) и используя формулу (14), получим $\frac{|P^{2\omega}|}{|E|^2} \approx 0.6 \cdot 10^{-9} \text{ esu}$. Это значение по порядку величины сравнимо с восприимчивостью такого материала, как дигидроортофосфат калия (KDP) [2,3]. Поэтому экспериментальное наблюдение данного эффекта представляется реальным.

Для эксперимента по обнаружению эффекта, связанного со спиновыми токами, в генерации второй гармоники удобно использовать многослойную искусственную ферромагнитную структуру. В такой структуре можно реализовать неколлинеарное распределение намагниченности, которое будет обладать значительной величиной неоднородности и контролироваться приложением внешнего магнитного поля [31]. В системе, состоящей из двух магнитных слоев, спиновый ток приобретает вид $\sigma_{ij} \sim [M_1, M_2]_i n_j$, где \mathbf{n} — вектор нормали к слоям. В применении к поляризации на удвоенной частоте $P^{2\omega}$ это означает, что в системе, кроме векторов M_1 и M_2 , появляется дополнительный вектор $[M_1, M_2]$, который входит в выражение для поляризации так же, как и намагниченности. Используя таблицу генерируемого намагниченной системой сигнала на удвоенной частоте в зависимости от поляризации падающего излучения и направления намагниченности [32], нетрудно видеть, что в случае, когда оба вектора M_1 и M_2 лежат в плоско-

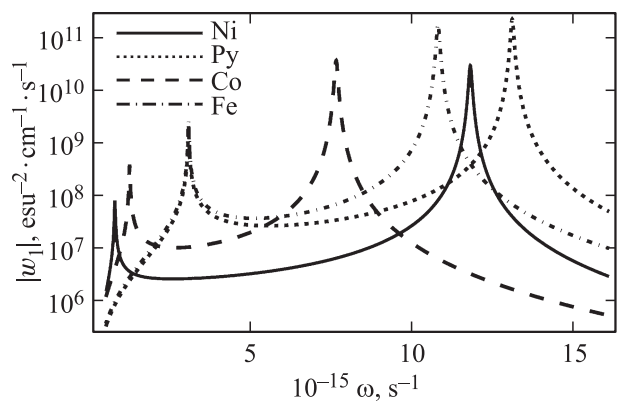


Рис. 5. Зависимость модуля w_1 от частоты для разных материалов (сплошная линия — никель). Параметры взяты из [27,28].

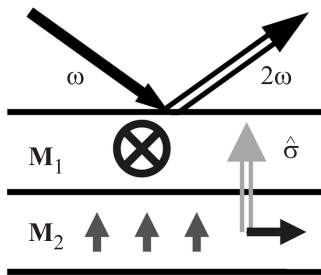


Рис. 6. Схема возможного эксперимента по измерению генерации второй гармоники в системе с равновесным спиновым током.

сти падения линейно поляризованной волны (рис. 6), p -поляризованного сигнала на удвоенной частоте нет. В то же время при появлении вектора $[\mathbf{M}_1, \mathbf{M}_2]$ указанный сигнал должен появиться. Таким образом, комбинации $p-p$ и $s-p$ падающего излучения и генерируемой на удвоенной частоте волны являются оптимальными для наблюдения нового эффекта, связанного со спиновым током в неколлинеарно намагниченной системе.

4. Заключение

В настоящей работе в гидродинамическом приближении изучены механизмы возникновения линейных и квадратичных по намагниченности эффектов в генерации второй гармоники в средах, в которых отсутствие центра инверсии достигается за счет пространственной неоднородности распределения намагниченности. Дано объяснение ранее наблюдавшемуся эффекту, связанному с наличием среднего тороидного момента системы. Помимо интерференционных эффектов, которые могут играть роль лишь в случае, если centrosymmetry нарушается в некоторых областях пространства за счет других материальных параметров (не намагниченности, а, например, плотности вещества), возникают эффекты, связанные с особенностями движения электронов проводимости в неоднородно намагниченной среде. К таким особенностям можно отнести осцилляции плотности электронов на частоте распространяющейся в среде волны, осцилляции среднего спина электронов из-за переноса спина под действием поля волны, возникновение скорости электронов на удвоенной частоте вследствие аномального эффекта Холла, зависящего от пространственных координат, а также эффект Холла на магнитном моменте, создаваемом самими электронами.

Исследован новый, ранее не наблюдавшийся эффект второго порядка по намагниченности, связанный с наличием в неколлинеарно намагниченной среде равновесного спинового тока. Данный эффект возникает вследствие „неадиабатической“ поправки к среднему спину электронов, перпендикулярной как намагниченности, так и направлению ее изменения. Эта поправка приводит к возникновению спинового тока на удвоенной частоте,

который трансформируется в электрический посредством обратного спинового эффекта Холла. Продемонстрировано, что эффект имеет резонансный характер и значительно усиливается вблизи плазменной частоты электронов проводимости. Выполнены оценки эффекта для различных материалов (никель, пермаллой, кобальт, железо) и даны рекомендации по его экспериментальному наблюдению.

Показано, что для реалистичных значений параметров как линейный, так и квадратичный по намагниченности эффекты, содержащие ее производную, определяются в основном обратным спиновым эффектом Холла.

Автор выражает благодарность А.А. Фраерману, Т.В. Мурзиной и А.Н. Караштину за полезные обсуждения.

Список литературы

- [1] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. Наука, М. (1982).
- [2] R.W. Boyd. Nonlinear Optics. Academ. Press, Rochester, N. Y. (2008).
- [3] Г.Г. Гурзаян, В.Г. Дмитриев, Д.Н. Никогосян. Нелинейно-оптические кристаллы. Свойства и применение в квантовой электронике. Радио и связь, М. (1991).
- [4] K. Reimann. Rep. Prog. Phys. **70**, 1597 (2007).
- [5] S.B. Bodrov, M.I. Bakunov, M. Hangyo. J. Appl. Phys. **104**, 093105 (2008).
- [6] S.B. Bodrov, A.N. Stepanov, M.I. Bakunov, B.V. Shishkin, I.E. Pyakov, R.A. Akhmedzhanov. Opt. Express **17**, 3, 1871 (2009).
- [7] Y.R. Shen. Ann. Rev. Mater. Sci. **16**, 69 (1986).
- [8] P. Guyot-Sionnest, W. Chen, Y.R. Shen. Phys. Rev. B **33**, 8254 (1986).
- [9] R.-P. Pan, H.D. Wei, Y.R. Shen. Phys. Rev. B **39**, 1229 (1989).
- [10] H.A. Wierenga, M.W.J. Prins, D.L. Abraham, Th. Rasing. Phys. Rev. B **50**, 1282 (1994).
- [11] I.A. Kolmychek, V.L. Krutyanskiy, T.V. Murzina, M.V. Sapozhnikov, E.A. Karashtin, V.V. Rogov, A.A. Fraerman. J. Opt. Soc. Am. B **32**, 331 (2015).
- [12] V.L. Krutyanskiy, I.A. Kolmychek, B.A. Gribkov, E.A. Karashtin, E.V. Skorohodov, T.V. Murzina. Phys. Rev. B **88**, 094424 (2013).
- [13] J. Wang, B.-F. Zhu, R.-B. Liu. Phys. Rev. Lett. **104**, 256601 (2010).
- [14] J. Wang, S.-N. Ji, B.-F. Zhu, R.-B. Liu. Phys. Rev. B **86**, 045215 (2012).
- [15] L.K. Werake, H. Zhao. Nature Phys. **6**, 875 (2010).
- [16] E. Sonin. Adv. Phys. **59**, 181 (2010).
- [17] J. Wang, K.S. Chan. Phys. Rev. B **74**, 035342 (2006).
- [18] J. Wang, K.S. Chan. J. Phys.: Condens. Matter. **19**, 236215 (2007).
- [19] Y.G. Shen, Z.H. Yang. Europhys. Lett. **78**, 17003 (2007).
- [20] W. Chen, P. Horsch, D. Manske. Phys. Rev. B **89**, 064427 (2014).
- [21] P. Bruno, V.K. Dugaev. Phys. Rev. B **72**, 241302(R) (2005).
- [22] E.A. Karashtin, A.A. Fraerman. <https://arxiv.org/abs/1704.02229>

- [23] А.А. Фраерман, О.Г. Удалов. Письма в ЖЭТФ **87**, 3, 187 (2008).
- [24] A.A. Fraerman, O.G. Udalov. Phys. Rev. B **77**, 094401 (2008).
- [25] В.Г. Барьяхтар, В.А. Львов, Д.А. Яблонский. Письма в ЖЭТФ **37**, 12, 565 (1983).
- [26] C.S. Wang, J. Callaway. Phys. Rev. B **9**, 4897 (1974).
- [27] А.П. Бабичев, Н.А. Бабушкина, А.М. Братковский, М.Е. Бродов, М.В. Быстрое, Б.В. Виноградов, Л.И. Винокурова, Э.Б. Гельман, А.П. Геппе, И.С. Григорьев, К.Г. Гуртовой, В.С. Егоров, А.В. Елецкий, Л.К. Зарембо, В.Ю. Иванов, В.Л. Ивашина, В.В. Игнатъев, Р.М. Имамов, А.В. Инюшкин, Н.В. Кадобнова, И.И. Карасик, К.-А. Кикоин, В.А. Криворучко, В.М. Кулаков, С.Д. Лазарев, Т.М. Лифшиц, Ю.Э. Любарский, С.В. Марин, И.А. Маслов, Е.З. Мейлихов, А.И. Мигачев, С.А. Миронов, А.Л. Мусатов, Ю.П. Никитин, Л.А. Новицкий, А.И. Обухов, В.И. Ожогин, Р.В. Писарев, Ю.В. Писаревский, В.С. Птускин, А.А. Радциг, В.П. Рудаков, Б.Д. Сумм, Р.А. Сюняев, М.Н. Хлопкин, И.Н. Хлюстикова, В.М. Черепанов, А.Г. Чертов, В.Г. Шапиро, В.М. Шустряков, С.С. Якимов, В.П. Яновский. Физические величины. Энергоатомиздат, М. (1991).
- [28] S. Zhang. Phys. Rev. Lett. **85**, 393 (2000).
- [29] H. Wang, C. Du, P. Chris Hammel, F. Yang. Appl. Phys. Lett. **104**, 202405 (2014).
- [30] Е.А. Караштин, А.А. Фраерман. ФТТ **58**, 11, 2149 (2016).
- [31] E.S. Demidov, N.S. Gusev, L.I. Budarin, E.A. Karashtin, V.L. Mironov, A.A. Fraerman. J. Appl. Phys. **120**, 173901 (2016).
- [32] A.A. Rzhetsky, B.B. Krichevstov, D.E. Burgler, C.M. Schneider. Phys. Rev. B **75**, 144416 (2007).