Письма в ЖЭТФ, том 117, вып. 12, с. 919 – 928 

# Фотоусиление экситонного упорядочения в сильно коррелированных системах со спиновым кроссовером

*Ю. С. Орлов*[+*1)], *С. В. Николаев*[+*], *С. Г. Овчинников*[+*]

[+] *Сибирский федеральный университет, 660041 Красноярск, Россия*

[*] *Институт физики им. Л. В. Киренского, Федеральный исследовательский центр "Красноярский научный центр" Сибирского отделения РАН, 660036 Красноярск, Россия*

Поступила в редакцию 12 мая 2023 г.
После переработки 12 мая 2023 г.
Принята к публикации 18 мая 2023 г.

Продемонстрирован новый механизм фотоусиления (индуцирования) экситонного упорядочения в сильно коррелированных системах со спиновым кроссовером, обусловленный возникновением массивной моды в спектре коллективных возбуждений.

DOI: 10.31857/S123456782312008X, EDN: ewezob

**1. Введение.** Изучение неравновесной динамики сильно коррелированных систем может дать новые знания в понимании их свойств и новые способы управления различными упорядоченными состояниями, возникающими в результате фазовых переходов. Например, сейчас широко изучаются неравновесные свойства сверхпроводников. Сообщалось как об индуцированном светом усилении сверхпроводимости [1–3], так и о наблюдении моды Хиггса [4–6]. В последнее время интерес вызывает и родственное семейство упорядоченных состояний – экситонные диэлектрики [7–12]. Среди теоретических работ в этом направлении нам бы хотелось выделить работу [13], в которой авторам удалось продемонстрировать новый механизм фотоусиления экситонного порядка в рамках двухзонной модели бесспиновых фермионов, связанных с фононами. По мнению авторов [13], сочетание фотовозбуждения и понижения симметрии гамильтониана может предоставить новую стратегию для увеличения сверхпроводящего параметра порядка в сверхпроводниках. Некоторая схожесть состояния экситонного конденсата со сверхпроводящим делает интересным изучение неравновесных свойств таких систем.

Что касается сильно коррелированных систем со спиновым кроссовером, до сих пор теоретические и экспериментальные работы по экситонному упорядочению в них фокусировались на исследовании их равновесных свойств [14–24]. Изучение же неравновесных свойств только началось. В связи с развитием в последнее время спектроскопии накачки-зондирования (pump-probe) с высоким временным разрешением интерес представляет возможность кроссовера под действием фемтосекундных лазерных импульсов [25, 26].

В противоположность традиционным экситонным диэлектрикам, где кулоновское взаимодействие ответственно за электрон-дырочное спаривание и формирование экситонов, в случае систем со спиновым кроссовером взаимодействие, приводящее к экситонному упорядочению, обусловлено межузельным электронным перескоком. Тем не менее, механизм фотоусиления, предложенный в [13], может быть реализован и в этом случае. Нам удалось продемонстрировать, что в сильно коррелированных системах со спиновым кроссовером возможно фотоусиление экситонного конденсата, не связанное с переходом в метастабильное или какое-либо возбужденное состояние. Научная новизна настоящей работы заключается в выявлении кооперативных эффектов, обусловленных межатомным экситонным и электрон-фононным взаимодействиями, в условиях неравновесности.

**2. Эффективный гамильтониан.** Минимальной моделью сильнокоррелированных систем со спиновым кроссовером является двухзонная модель Хаббарда–Канамори. Гамильтониан модели может быть представлен в виде

$$\hat{H} = \hat{H}_\Delta + \hat{H}_t + \hat{H}_{\mathrm{Coulomb}}. \qquad (1)$$

Здесь первое слагаемое

$$\hat{H}_\Delta = \varepsilon_1 \sum_{i,\gamma} c^\dagger_{1i\gamma} c_{1i\gamma} + \varepsilon_2 \sum_{i,\gamma} c^\dagger_{2i\gamma} c_{2i\gamma} \qquad (2)$$

[1)] e-mail: jso.krasn@mail.ru

содержит одноионную энергию электронов в одночастичных состояниях с уровнями энергии $\varepsilon_1$ и $\varepsilon_2 = \varepsilon_1 + \Delta$, где $\Delta$ – энергия электронов в кристаллическом поле (из соображений удобства можно положить $\varepsilon_1 = 0$), $i$ – номер узла решетки, $\gamma = \pm 1/2$ – проекция спина электрона. Второе слагаемое

$$\hat{H}_t = t_{11} \sum_{\langle i,j\rangle,\gamma} c^{\dagger}_{1i\gamma} c_{1j\gamma} + t_{22} \sum_{\langle i,j\rangle,\gamma} c^{\dagger}_{2i\gamma} c_{2j\gamma} + \\ + t_{12} \sum_{\langle i,j\rangle,\gamma} \left( c^{\dagger}_{2i\gamma} c_{1j\gamma} + c^{\dagger}_{1i\gamma} c_{2j\gamma} \right), \quad (3)$$

где $t_{\lambda\lambda'}$ – параметры перескока ($\lambda, \lambda' = 1, 2$ – орбитальный индекс) описывают перескок электронов между ближайшими соседними узлами кристаллической решетки с уровнями энергии $\varepsilon_1$ и $\varepsilon_2$. Третье слагаемое

$$\hat{H}_{\text{Coulomb}} = U \sum_{\lambda,i} c^{\dagger}_{\lambda i\uparrow} c^{\dagger}_{\lambda i\downarrow} c_{\lambda i\uparrow} c_{\lambda i\downarrow} + \\ + V \sum_{\lambda\neq\lambda',i} c^{\dagger}_{\lambda i\uparrow} c^{\dagger}_{\lambda' i\downarrow} c_{\lambda i\uparrow} c_{\lambda' i\downarrow} + \\ + V \sum_{\lambda>\lambda',i,\gamma} c^{\dagger}_{\lambda i\gamma} c^{\dagger}_{\lambda' i\gamma} c_{\lambda i\gamma} c_{\lambda' i\gamma} + \\ + J_H \sum_{\lambda>\lambda',i,\gamma} c^{\dagger}_{\lambda i\gamma} c^{\dagger}_{\lambda' i\gamma} c_{\lambda' i\gamma} c_{\lambda i\gamma} + \\ + J_H \sum_{\lambda\neq\lambda',i} c^{\dagger}_{\lambda i\uparrow} c^{\dagger}_{\lambda' i\downarrow} c_{\lambda' i\uparrow} c_{\lambda i\downarrow} + \\ + J'_H \sum_{\lambda\neq\lambda',i} c^{\dagger}_{\lambda i\uparrow} c^{\dagger}_{\lambda i\downarrow} c_{\lambda' i\uparrow} c_{\lambda' i\downarrow} \quad (4)$$

содержит одноузельную энергию кулоновского взаимодействия электронов (электрон-электронное взаимодействие рассматривается в приближении Канамори с диагональным по орбитальным индексам матричным элементом $U$ и недиагональным $V$, а также хундовскими параметрами обменного взаимодействия $J_H$, $J'_H$ [27]).

Важной особенностью такой двухорбитальной модели является возможность формирования в случае половинного заполнения ($N_e = 2$ – среднее число электронов на узел кристаллической решетки) и в нулевом приближении по межузельным перескокам $t_{\lambda\lambda'} = 0$ различных локализованных многоэлектронных (двухчастичных) состояний (термов), которые характеризуются значениями спина $S = 0, 1$ и кроссовера между ними с ростом $\Delta$. В области $\Delta < \Delta_C = \sqrt{(U - V + J_H)^2 + {J'_H}^2}$ основным является триплетное ($S = 1$) HS-состояние $|\sigma\rangle$ с энергией $E_{HS}$, трехкратно вырожденное по проекции спина $\sigma = 0, \pm 1$:

$$|\sigma\rangle = \begin{cases} a^{\dagger}_{1\uparrow} a^{\dagger}_{2\uparrow} |0\rangle, \sigma = +1, \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \left( a^{\dagger}_{1\uparrow} a^{\dagger}_{2\downarrow} |0\rangle + a^{\dagger}_{1\downarrow} a^{\dagger}_{2\uparrow} |0\rangle \right), \sigma = 0, \\ a^{\dagger}_{1\downarrow} a^{\dagger}_{2\downarrow} |0\rangle, \sigma = -1 \end{cases}$$

а при $\Delta > \Delta_C$ основным является синглетное ($S = 0$) LS-состояние $|s\rangle = C_1(\Delta)\, a^{\dagger}_{1\uparrow} a^{\dagger}_{1\downarrow} |0\rangle - C_2(\Delta)\, a^{\dagger}_{2\uparrow} a^{\dagger}_{2\downarrow} |0\rangle$ с энергией $E_{LS}$, где $C_1(\Delta) = \sqrt{1 - C_2^2(\Delta)}$, $C_2(\Delta) = x/2\left(1 + x + \sqrt{1 + x}\right)$ – нормировочные коэффициенты ($x = {J'_H}^2 \big/ \Delta^2$).

Для вывода эффективного гамильтониана удобно использовать $X$-операторы Хаббарда $X^{p,q} = |p\rangle\langle q|$ [28], построенные на собственных состояниях гамильтониана $\hat{H}_{\Delta} + \hat{H}_{\text{Coulomb}}$

$$\left( \hat{H}_{\Delta} + \hat{H}_{\text{Coulomb}} \right) |p\rangle = E_p |p\rangle \quad (5)$$

с различным числом электронов $N_e = 0, 1, 2, 3, 4$. Поскольку операторы Хаббарда образуют линейно независимый базис, то любой локальный оператор может быть выражен через линейную комбинацию $X$-операторов, в том числе одноэлектронный оператор уничтожения (рождения):

$$c_{\lambda i\gamma} = \sum_{pq} |p\rangle \langle p | c_{\lambda i\gamma} | q\rangle \langle q| = \sum_{pq} \chi_{\lambda\gamma}(p, q)\, X_i^{p,q}. \quad (6)$$

Или, поскольку число различных пар состояний $(p, q)$, отличающихся на единицу числом электронов, конечно, можно их пронумеровать и каждой паре поставить в соответствие номер $l$ [29], имеющий смысл зонного индекса локальных фермиевских квазичастиц. Тогда $c_{i\lambda\gamma} = \sum\limits_{l} \chi_{\lambda\gamma}(l)\, X_i^l$, $c^{\dagger}_{i\lambda\gamma} = \sum\limits_{l} \chi^{*}_{\lambda\gamma}(l)\, X_i^{l\dagger}$. С помощью (6) аномальные средние $\left\langle a^{\dagger}_{2f\gamma} a_{1f\gamma} \right\rangle$ (без переворота спина) и $\left\langle a^{\dagger}_{2f\bar{\gamma}} a_{1f\gamma} \right\rangle$ (с переворотом спина, $\bar{\gamma} = -\gamma$) могут быть представлены в виде

$$\left\langle c^{\dagger}_{2f\gamma} c_{1f\gamma} \right\rangle \approx -\gamma\sqrt{2} \left( C_2 \left\langle X_f^{s,0} \right\rangle + C_1 \left\langle X_f^{0,s} \right\rangle \right), \quad (7)$$

$$\left\langle c^{\dagger}_{2f\bar{\gamma}} c_{1f\gamma} \right\rangle \approx 2\gamma \left( \gamma - \frac{1}{2} \right) \left( C_2 \left\langle X_f^{s,-1} \right\rangle + C_1 \left\langle X_f^{-1,s} \right\rangle \right) - \\ - 2\gamma \left( \gamma + \frac{1}{2} \right) \left( C_2 \left\langle X_f^{s,+1} \right\rangle + C_1 \left\langle X_f^{+1,s} \right\rangle \right). \quad (8)$$

В выражениях (7) и (8) отброшены средние от $X$-операторов, построенных на состояниях с числом электронов меньше или больше двух. Мы рассматриваем случай половинного заполнения (двухчастичные состояния) с фиксированным числом электронов на узел кристаллической решетки (гомополярная модель твердого тела), поэтому вклад таких средних пренебрежимо мал.

Как видно из формул (7) и (8), экситонное спаривание описывается ненулевыми средними синглет-триплетных возбуждений. Здесь и ниже угловые скобки $\langle ... \rangle$ обозначают квантово-статистическое среднее. Отличие от нуля средних $\langle X_i^{\sigma,s} \rangle = \left\langle (X_i^{s,\sigma})^\dagger \right\rangle = \langle X_i^{s,\sigma} \rangle^*$ означает квантовомеханическое смешивание LS- и HS-состояний, но в отсутствии спин-орбитального взаимодействия. В представлении $X$-операторов Хаббарда гамильтониан (1) имеет вид:

$$\hat{H} = \sum_{i,p} E_p X_i^{p,p} + \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{l,k} t^{lk} X_i^{l\dagger} X_j^k. \qquad (9)$$

Здесь $E_p$ – энергия многоэлектронных термов, $t^{lk} = \sum\limits_{\lambda,\lambda',\gamma} t_{\lambda\lambda'} \chi^*_{\lambda\gamma}(l)\, \chi_{\lambda'\gamma}(k)$ – перенормированные параметры перескока.

Используя гамильтониан (9) как исходный, мы можем получить эффективный гамильтониан, исключив из него межзонные перескоки. Для этого используем метод проекционных операторов, развитый в работе [30] для модели Хаббарда и в [31] для $p$-$d$-модели (см. также [15, 14]). Эффективный гамильтониан имеет вид

$$\hat{H}_{\text{eff}} = \hat{H}_S + \hat{H}_{n_{LS} n_{LS}} + \hat{H}_{ex}. \qquad (10)$$

Здесь первое слагаемое – гамильтониан гейзенберговского типа содержит межатомное обменное взаимодействие

$$\hat{H}_S = \frac{1}{2} J \sum_{\langle i,j \rangle} \left( \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_j - \frac{1}{4} \hat{n}_i \hat{n}_j \right), \qquad (11)$$

где $\hat{\mathbf{S}}_i$ – оператор спина $S = 1$: $\hat{S}_i^+ = \sqrt{2}\left(X_i^{+1,0} + X_i^{0,-1}\right)$, $\hat{S}_i^- = \sqrt{2}\left(X_i^{0,+1} + X_i^{-1,0}\right)$ и $\hat{S}_i^z = X_i^{+1,+1} - X_i^{-1,-1}$ [32]; $J = \left(t_{11}^2 + 2t_{12}^2 + t_{22}^2\right)/\Omega_g$ – величина межатомного обменного взаимодействия, $\Omega_g$ – энергия переноса заряда между центрами верхних и нижних хаббардовских подзон [30, 31]; $\hat{n}_i = 2\left(X_i^{s,s} + \sum\limits_\sigma X_i^{\sigma,\sigma}\right) = 2\left(\hat{n}_i^{LS} + \hat{n}_i^{HS}\right)$ – оператор числа частиц на узле $i$ ($\hat{n}_i^{LS(HS)}$ – оператор числа заполнения LS(HS)-состояния). Используя условие полноты $X^{s,s} + \sum\limits_\sigma X^{\sigma,\sigma} = 1$, можно показать, что $\langle \hat{n}_i \rangle = 2\left(\langle \hat{n}_i^{LS} \rangle + \langle \hat{n}_i^{HS} \rangle\right) = 2\left(n_{LS} + n_{HS}\right) = 2$, где $n_{LS(HS)}$ – среднее число частиц в LS(HS)-состоянии ($n_{LS} + n_{HS} = 1$).

Второе слагаемое

$$\hat{H}_{n_{LS} n_{LS}} = \frac{1}{2} \tilde{J} \sum_{\langle i,j \rangle} X_i^{s,s} \cdot X_j^{s,s} \qquad (12)$$

описывает взаимодействие типа плотность-плотность низкоспиновых состояний, $\tilde{J} = \left[1 - (2C_1C_2)^2\right]\left(t_{11}^2 - 2t_{12}^2 + t_{22}^2\right)/\Omega_g$.

Третий член в (10) содержит межатомный перескок экситонов с амплитудой $J'_{ex}$ и рождение/уничтожение на соседних узлах биэкситонов с амплитудой $J''_{ex}$ с учетом энергии электронных конфигураций LS- и HS-состояний

$$\begin{aligned} \hat{H}_{ex} = &-\frac{\varepsilon_S}{2} \sum_i \left( X_i^{s,s} - \sum_{\sigma=-S}^{+S} X_i^{\sigma,\sigma} \right) + \\ &+ \sum_\sigma \sum_{\langle i,j \rangle} \left[ \frac{1}{2} J'_{ex} \left( X_i^{\sigma,s} X_j^{s,\sigma} + X_i^{s,\sigma} X_j^{\sigma,s} \right) - \right. \\ &\left. - \frac{1}{2} J''_{ex} (-1)^{|\sigma|} \left( X_i^{\sigma,s} X_j^{\bar{\sigma},s} + X_i^{s,\sigma} X_j^{s,\bar{\sigma}} \right) \right], \end{aligned} \qquad (13)$$

где $\varepsilon_S = E_{HS} - E_{LS}$ – спиновая щель, в отсутствие всех кооперативных взаимодействий отрицательному значению спиновой щели соответствует основное HS-состояние, а в случае положительной спиновой щели в качестве основного состояния реализуется LS-состояние; $J'_{ex} = 2C_1C_2\left(t_{11}t_{22} - t_{12}^2\right)/\Omega_g$, $J''_{ex} = \left(t_{11}t_{22} - t_{12}^2\right)/\Omega_g$, $\bar{\sigma} = -\sigma$. В (13) операторы Хаббарда $X_i^{\sigma,s}$ и $X_i^{s,\sigma}$ описывают возбуждения бозе-типа (экситоны) на узле $i$ из низкоспинового синглетного состояния $|s\rangle$ в высокоспиновое триплетное $|\sigma\rangle$ с проекцией спина $\sigma = 0, \pm 1$ и наоборот. Первое слагаемое в квадратных скобках (13) описывает дисперсию экситонов за счет межатомных перескоков, такая дисперсия была рассмотрена еще в работе Вонсовского и Свирского [33]. Второе слагаемое в (13) содержит рождение и уничтожение биэкситонов на соседних узлах решетки $(i,j)$, что сразу усложняет дисперсию экситонов по сравнению с обычной в методе сильной связи [33]. Вблизи спинового кроссовера $C_1 \approx 1$, а $C_2 \approx 0$, поэтому $J'_{ex} \approx 0$. В этих условиях биэкситонные возбуждения играют главную роль в формировании дисперсии экситонов. Гамильтониан (13) описывает кинетическое экситон-экситонное взаимодействие [34] в представлении $X$-операторов Хаббарда.

Если ввести обозначения $\hat{d}_x = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(-\hat{d}_+ + \hat{d}_-\right)$, $\hat{d}_y = \frac{1}{\sqrt{2}i}\left(\hat{d}_+ + \hat{d}_-\right)$, $\hat{d}_z = \hat{d}_0$ [20], где $\hat{d}_+ = X^{s,+}$, $\hat{d}_- = X^{s,-}$, $\hat{d}_0 = X^{s,0}$, то последнее слагаемое в (13) можно представить в виде

$$\frac{J'_{ex}}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} \left( \hat{\mathbf{d}}_i^\dagger \cdot \hat{\mathbf{d}}_j + \hat{\mathbf{d}}_i \cdot \hat{\mathbf{d}}_j^\dagger \right) - \frac{J''_{ex}}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} \left( \hat{\mathbf{d}}_i^\dagger \cdot \hat{\mathbf{d}}_j^\dagger + \hat{\mathbf{d}}_i \cdot \hat{\mathbf{d}}_j \right). \qquad (14)$$

Вектор $\hat{\mathbf{d}} = \left(\hat{d}_x, \hat{d}_y, \hat{d}_z\right)$ соответствует так называемому **d**-вектору в теории триплетной сверхпроводимости.

В работе [35] нами рассмотрены особенности формирования экситонного бозе-конденсата, представляющего собой конденсацию локальных (на узле кристаллической решетки) магнитных экситонов (экситонов малого радиуса), в сильно коррелированных системах вблизи спинового кроссовера, описывающегося гамильтонианом (13) и экситонным параметром порядка $\Delta_{ex}^{\sigma} = \langle X_i^{s,\sigma} \rangle$. В [35] показано сосуществование антиферромагнетизма и экситонного конденсата и возникновение дальнего антиферромагнитного порядка вследствие экситонного упорядочения даже в отсутствие межатомного обменного взаимодействия (11).

В дальнейшем для удобства все величины мы будем указывать в единицах обменного взаимодействия $J = 28$ K [36] даже тогда, когда это взаимодействие не учитывается.

С учетом электрон-фононного взаимодействия будем иметь

$$\hat{H} = \hat{H}_{\rm eff} + \hat{H}_{1ph} + \hat{H}_{2ph}, \qquad (15)$$

где

$$\hat{H}_{1ph} = \omega_{0(1)} \sum_i \left( a_i^{\dagger} a_i + \frac{1}{2} \right) + + g_1 \sum_i \left( a_i + a_i^{\dagger} \right) \left( X_i^{s,s} - \sum_{\sigma=-1}^{+1} X_i^{\sigma,\sigma} \right) \qquad (16)$$

содержит диагональное электрон-фононное взаимодействие и описывает изотропное сжатие/расширение катион-анионного октаэдра (“$a$” типа фононная мода соответствует дыхательной моде октаэдра металл-лиганд).

$$\hat{H}_{2ph} = \omega_{0(2)} \sum_i \sum_{\sigma=-1}^{+1} \left( b_{i,\sigma}^{\dagger} b_{i,\sigma} + \frac{1}{2} \right) + + g_2 \sum_i \sum_{\sigma=-1}^{+1} \left( b_{i,\sigma} + b_{i,\sigma}^{\dagger} \right) (X_i^{s,\sigma} + X_i^{\sigma,s}) \qquad (17)$$

описывает недиагональные электрон-фононные процессы перехода из синглета $|s\rangle$ в триплет $|\sigma\rangle$ и обратно. Здесь $g_{1(2)}$ – константы электрон-фононного взаимодействия, $\omega_{0(1,2)}$ – частоты фононов “$a$” и “$b$” типа.

**3. Игрушечная модель.** Фотоусиление экситонного конденсата в одномерной двухзонной модели безспиновых фермионов, взаимодействующих с фононами “$a$” и “$b$” типа, обсуждалось в работе [13]. Решая систему уравнений движения для операторов электронной и фононной подсистем и их средних в приближении зависящего от времени среднего поля с учетом внешней накачки, авторам [13] удалось продемонстрировать новый механизм фотоусиления экситонного упорядочения, обусловленный возникновением массивной моды (открытием щели) в спектре коллективных возбуждений и изменением основного состояния под действием внешнего излучения и не связанный с возбуждением метастабильных или каких-либо других лежащих выше по энергии состояний системы. В отличие от [13], где кулоновское взаимодействие ответственно за электрон-дырочное спаривание и формирование экситонов, в нашем случае взаимодействия $J'_{ex}$ и $J''_{ex}$ в гамильтониане (13) имеют кинематическую природу и обусловлены перескоком электронов между узлами кристаллической решетки, но механизм фотоусиления [13] может быть реализован и в этом случае. Однако решение системы уравнений движения для $X$-операторов Хаббарда с гамильтонианом (15) является довольно громоздкой задачей. Попробуем максимально упростить рассмотренный выше случай и проанализировать механизм фотоусиления на примере искусственно упрощенного гамильтониана двухуровневой системы локальных одноэлектронных состояний “0” и “1” с энергией $\varepsilon_0$ и $\varepsilon_1$. Для этого вместо (13) запишем, аналогичное по своему содержанию, выражение (18), но в представлении одночастичных фермиевских безспиновых операторов $c_{\lambda i}$ ($c_{\lambda i}^{\dagger}$) уничтожения (рождения) электронов на узле $i$ в состоянии $\lambda = 0, 1$

$$\hat{H}_{ex} = \varepsilon_0 \sum_i c_{0i}^{\dagger} c_{0i} + \varepsilon_1 \sum_i c_{1i}^{\dagger} c_{1i} + + \frac{J'_{ex}}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} \left( c_{0i}^{\dagger} c_{1i} c_{1j}^{\dagger} c_{0j} + c_{1i}^{\dagger} c_{0i} c_{0j}^{\dagger} c_{1j} \right) + + \frac{J''_{ex}}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} \left( c_{1i}^{\dagger} c_{0i} c_{1j}^{\dagger} c_{0j} + c_{0i}^{\dagger} c_{1i} c_{0j}^{\dagger} c_{1j} \right). \qquad (18)$$

Если в (13), к примеру, оператор $X_i^{\sigma,s}$ описывал переход из двухчастичного синглетного $|s\rangle$ состояния в состояние триплета $|\sigma\rangle$, то аналогичную роль в (18) играет операторная конструкция $c_{1i}^{\dagger} c_{0i}$.

С учетом электрон-фононного взаимодействия будем иметь

$$\hat{H} = \hat{H}_{ex} + \hat{H}_{1ph} + \hat{H}_{2ph}, \qquad (19)$$

где

$$\hat{H}_{1ph} = \hbar\omega_{0(1)} \sum_i \left( a_i^{\dagger} a_i + \frac{1}{2} \right) + + g_1 \sum_i \left( a_i + a_i^{\dagger} \right) \left( c_{0i}^{\dagger} c_{0i} - c_{1i}^{\dagger} c_{1i} \right) \qquad (20)$$

аналогично (16) содержит диагональное электрон-фононное взаимодействие, а

$$\hat{H}_{2ph} = \hbar\omega_{0(2)} \sum_i \left( b_i^\dagger b_i + \frac{1}{2} \right) + \\ + g_2 \sum_i \left( b_i + b_i^\dagger \right) \left( c_{1i}^\dagger c_{0i} + c_{0i}^\dagger c_{1i} \right) \quad (21)$$

аналогично (17) описывает недиагональные электрон-фононные процессы перехода из состояния "0" в "1" и обратно.

В приближении среднего поля (MF) гамильтониан (18) имеет вид (22)

$$\hat{H}_{ex}^{MF} = \varepsilon_0 \sum_i c_{0i}^\dagger c_{0i} + \varepsilon_1 \sum_i c_{1i}^\dagger c_{1i} + \\ + \sum_i \Big[ \left( zJ'_{ex}\phi + zJ''_{ex}\phi^* \right) c_{1i}^\dagger c_{0i} + \\ + \left( zJ'_{ex}\phi^* + zJ''_{ex}\phi \right) c_{0i}^\dagger c_{1i} \Big] - \\ - zJ'_{ex} N \phi\phi^* - z\frac{J''_{ex}}{2} N \left( \phi\phi + \phi^*\phi^* \right), \quad (22)$$

где $\phi = \left\langle \hat{\phi}_i \right\rangle \equiv \left\langle c_{0i}^\dagger c_{1i} \right\rangle$ – экситонный параметр порядка, аналогичный $\Delta_{ex}^{\sigma} = \langle X_i^{s,\sigma} \rangle$ в случае (13); $N$ – число узлов кристаллической решетки.

Решая самосогласованно задачу на собственные значения

$$\hat{H}_{MF} \left| i, m \right\rangle = E_m \left| i, m \right\rangle, \quad (23)$$

где $|i, m\rangle$ $(m = 0, 1, ..., \mathcal{N})$ – собственные состояния гамильтониана $\hat{H}_{MF} = \hat{H}_{ex}^{MF} + \hat{H}_{1ph} + \hat{H}_{2ph}$, можно найти интересующие средние

$$\phi = \frac{1}{Z} \sum_m \left\langle i, m \left| \hat{\phi}_i \right| i, m \right\rangle e^{-E_m/k_B T}, \quad (24)$$

отвечающие глобальному минимуму свободной энергии $F = -k_B T \ln Z$, где $Z = \sum_m e^{-E_m/k_B T}$ – статистическая сумма системы, для различных значений щели $\varepsilon_S = \varepsilon_1 - \varepsilon_0$ (или внешнего приложенного давления $P$) и температуры $T$. Решения (23) и (24), отвечающие локальным минимумам свободной энергии $F$, являются метастабильными.

На рисунке 1 представлена зависимость $\phi$ от величины расщепления $\varepsilon_S$, полученная в приближении среднего поля при $T = 0$. Красной штриховой линией показан результат расчета без электрон-фононного взаимодействия, а синей сплошной линией при $g_2 = 1.25J$ и $g_1 = 0$. Видно, что недиагональное электрон-фононное взаимодействие приводит к увеличению экситонной области. Наоборот, при $g_2 = 0$ и $g_1 = 1.25J$ (зеленая сплошная линия на рис. 1) область экситонного упорядочения уменьшается.

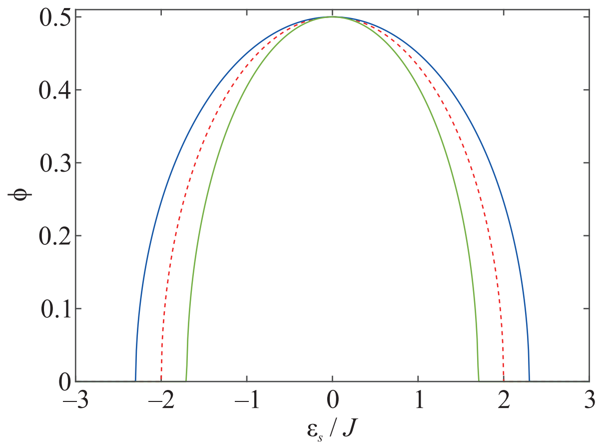


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость экситонного параметра порядка $\phi$ от величины расщепления $\varepsilon_S$, полученная в приближении среднего поля при $T = 0$ без учета (красная штриховая линия, $g_1 = 0$, $g_2 = 0$), с учетом недиагонального (синяя сплошная линия, $g_1 = 0$, $g_2 = 1.25J$) и диагонального (зеленая сплошная линия, $g_1 = 1.25J$, $g_2 = 0$) электрон-фононного взаимодействия. Расчеты выполнены для следующего набора параметров: $z = 4$, $J = 28$ K, $J''_{ex} = -0.5J$

**4. Спектр возбуждений.** Для нахождения спектра экситонных возбуждений: коллективных – в фазе экситонного конденсата ($\phi \neq 0$ на рис. 1) и квазичастичных (одночастичных) – вне области экситонного упорядочения ($\phi = 0$ на рис. 1), используем обобщенный метод спиновых волн. Ниже мы вкратце изложим содержание метода. Для более детального ознакомления можно обратиться к работам [37, 38, 14].

С учетом определения оператора $\hat{\phi}_i \equiv c_{0i}^\dagger c_{1i}$, последние два слагаемых в (18) могут быть представлены в виде, аналогичном (14):

$$\frac{J'_{ex}}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} \left( \hat{\boldsymbol{\phi}}_i^\dagger \cdot \hat{\boldsymbol{\phi}}_j + \hat{\boldsymbol{\phi}}_i \cdot \hat{\boldsymbol{\phi}}_j^\dagger \right) + \\ + \frac{J''_{ex}}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} \left( \hat{\boldsymbol{\phi}}_i \cdot \hat{\boldsymbol{\phi}}_j + \hat{\boldsymbol{\phi}}_i^\dagger \cdot \hat{\boldsymbol{\phi}}_j^\dagger \right). \quad (25)$$

Гамильтониан (19) может быть представлен в виде

$$\hat{H} = \hat{H}_{MF} + \delta\hat{H}_{ex}, \quad (26)$$

где

$$\delta\hat{H}_{ex} = \frac{1}{2} J'_{ex} \sum_{\langle i,j \rangle} \left( \delta\hat{\boldsymbol{\phi}}_i \cdot \delta\hat{\boldsymbol{\phi}}_j^\dagger + \delta\hat{\boldsymbol{\phi}}_i^\dagger \cdot \delta\hat{\boldsymbol{\phi}}_j \right) + \\ + \frac{1}{2} J''_{ex} \sum_{\langle i,j \rangle} \left( \delta\hat{\boldsymbol{\phi}}_i \cdot \delta\hat{\boldsymbol{\phi}}_j + \delta\hat{\boldsymbol{\phi}}_i^\dagger \cdot \delta\hat{\boldsymbol{\phi}}_j^\dagger \right) \quad (27)$$

описывает взаимодействия за среднем полем, $\delta\hat{\phi}_i = \hat{\phi}_i - \left\langle \hat{\phi} \right\rangle_{MF}$.

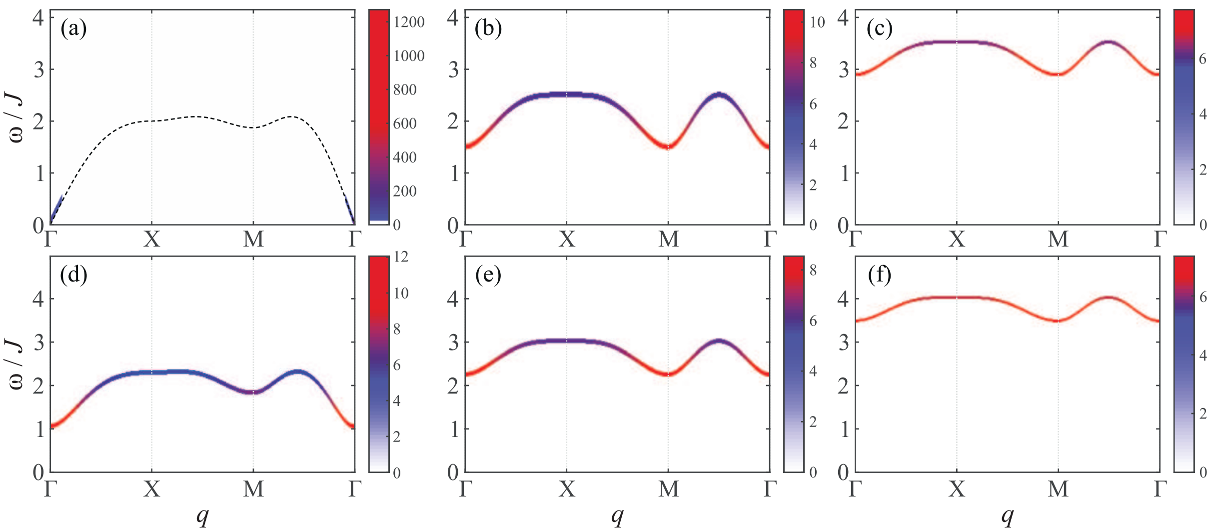


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектр возбуждений. В верхнем ряду приведены результаты расчета в отсутствие электрон-фононного взаимодействия при $\varepsilon_S/J = 1.5$ (a) – в фазе экситонного конденсата и при $\varepsilon_S/J = 2.5$ (b), 3.5 (c) – вне фазы экситонного конденсата. В нижнем ряду приведены результаты расчета при наличии недиагонального электрон-фононного взаимодействия ($g_1 = 0$, $g_2 = 1.25J$) для $\varepsilon_S/J = 2$ (d) – в области экситонного упорядочения и для $\varepsilon_S/J = 3$ (e), 4 (f) – вне области экситонного упорядочения. Цветом показано распределение спектрального веса. Расчеты выполнены для следующего набора параметров: $z = 4$, $J = 28$ K, $J''_{ex} = -0.5J$

Локальную флуктуацию $\delta\hat{\phi}_i$ можно разложить по $X$-операторам Хаббарда, построенным на собственных состояниях гамильтониана $\hat{H}_{MF}$, которые определяются из решения самосогласованной задачи на собственные значения (23)–(24). Таким образом, получаем

$$\delta\hat{\phi}_i = \sum_{m,n} \left\langle i, m \left| \delta\hat{\phi}_i \right| i, n \right\rangle X_i^{m,n} = \sum_{m,n} \gamma\left(m, n\right) X_i^{m,n}, \tag{28}$$

где $X_i^{m,n} = |i, m\rangle \langle n, i|$.

В обобщенном представлении Гольдштейна–Примакова

$$X_i^{m,0} = h_{im}^{\dagger} \left( 1 - \sum_{n=1}^{\mathcal{N}} h_{in}^{\dagger} h_{in} \right)^{1/2} \tag{29}$$

и $X_i^{0,m} = \left(X_i^{m,0}\right)^{\dagger}$ для $m \geq 1$,

$$X_i^{m,n} = h_{im}^{\dagger} h_{in} \tag{30}$$

для $m, n \geq 1$ и

$$X_i^{0,0} = 1 - \sum_{n=1}^{\mathcal{N}} h_{in}^{\dagger} h_{in}, \tag{31}$$

где $h_{in}^{\dagger}$ ($h_{in}$) – бозе-операторы рождения (уничтожения) Гольдштейна–Примакова. Выражение (31) есть следствие условия: $1 \equiv X_i^{0,0} + \sum\limits_{n=1}^{\mathcal{N}} h_{in}^{\dagger} h_{in}$. Разлагая (29) в ряд и используя, что при низких температурах $\left\langle i, 0 \left| \delta\hat{\phi}_i \right| i, 0 \right\rangle = \left\langle i, 0 \left| \hat{\phi}_i \right| i, 0 \right\rangle - \left\langle \hat{\phi} \right\rangle_{MF} \approx 0$ или $\gamma\left(0, 0\right) \approx 0$, гамильтониан (26) можно представить в виде квадратичной формы, отбросив слагаемые более высокого порядка:

$$\hat{H}_{SW} = \sum_{\mathbf{q}, m \geq 1} \Delta E_m h_{\mathbf{q}m}^{\dagger} h_{\mathbf{q}m} + \\ + \sum_{\mathbf{q}, m \geq, n \geq 1,} \gamma_{\mathbf{q}} \left\{ J_{mn} h_{\mathbf{q}m}^{\dagger} h_{-\mathbf{q}n}^{\dagger} + \tilde{J}_{mn} h_{\mathbf{q}m}^{\dagger} h_{\mathbf{q}n} + \text{h.c.} \right\}, \tag{32}$$

где $\Delta E_m = E_m - E_0$, $\gamma_{\mathbf{q}} = \sum\limits_{\boldsymbol{\rho}} e^{i\mathbf{q}\cdot\boldsymbol{\rho}}$ (вектор $\boldsymbol{\rho}$ пробегает по всем ближайшим соседям), $h_{\mathbf{q}m} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum\limits_{i} e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_i} h_{im}$,

$$J_{mn} = \frac{J'_{ex}}{2} \left\{ \gamma^*\left(0, m\right) \gamma\left(n, 0\right) + \gamma\left(m, 0\right) \gamma^*\left(0, n\right) \right\} + \\ + \frac{J''_{ex}}{2} \left\{ \gamma\left(m, 0\right) \gamma\left(n, 0\right) + \gamma^*\left(0, m\right) \gamma^*\left(0, n\right) \right\}, \\ \tilde{J}_{mn} = \frac{J'_{ex}}{2} \left\{ \gamma^*\left(0, m\right) \gamma\left(0, n\right) + \gamma\left(m, 0\right) \gamma^*\left(n, 0\right) \right\} + \\ + \frac{J''_{ex}}{2} \left\{ \gamma\left(m, 0\right) \gamma\left(0, n\right) + \gamma^*\left(0, m\right) \gamma^*\left(n, 0\right) \right\}. \tag{33}$$

С помощью параунитарного преобразования [39] гамильтониан (32) может быть приведен к диагональному виду

$$\hat{H}_{SW} = \sum_{\mathbf{q},\mu} \omega_{\mathbf{q}\mu} \alpha^{\dagger}_{\mathbf{q}\mu} \alpha_{\mathbf{q}\mu} + \mathrm{const}. \tag{34}$$

Обобщенный метод спиновых волн позволяет определять динамическую восприимчивость. В нашем случае для гамильтониана (19) удобно ввести псевдоспин $\hat{\mathbf{P}}$ с компонентами $\hat{P}_x = \hat{\phi} + \hat{\phi}^{\dagger}$ и $\hat{P}_y = i\left(\hat{\phi} - \hat{\phi}^{\dagger}\right)$ и определить соответствующую псевдоспиновую восприимчивость. При $T = 0$ динамическая псевдоспиновая восприимчивость имеет вид:

$$\chi_{\xi\xi'}(\mathbf{q},\omega) = i\int_0^{\infty} dt \left\langle 0\left|\left[\delta\hat{P}_{\mathbf{q}\xi}(t), \delta\hat{P}_{-\mathbf{q}\xi'}\right]\right|0\right\rangle e^{i\omega t - \delta t} = -\int_{-\infty}^{\infty} dE \frac{A_{\xi\xi'}(\mathbf{q},E)}{\omega - E + i\delta}, \tag{35}$$

где $|0\rangle$ – вакуумное состояние для операторов $\alpha_{\mathbf{q}\mu}$, $A_{\xi\xi'}(\mathbf{q},E)$ – спектральная функция, описывающая распределение спектрального веса коллективных возбуждений в зоне Бриллюэна.

$$A_{\xi\xi'}(\mathbf{q},E) = -\frac{1}{\pi}\sum_{\mu} W_{\mathbf{q}\xi\mu} W^{*}_{\mathbf{q}\xi'\mu} \mathrm{Im}\left(\frac{1}{E - \omega_{\mathbf{q}\mu} + i\delta}\right), \tag{36}$$

где $W_{\mathbf{q}\xi\mu} = \sum_{\mathbf{q}'} \left\langle 0\left|\delta\hat{P}_{\mathbf{q}\xi}\right|\mu,\mathbf{q}'\right\rangle \left\langle \mu,\mathbf{q}'\left|\delta\hat{P}_{-\mathbf{q}\xi'}\right|0\right\rangle$, $|\mu,\mathbf{q}\rangle = \alpha^{\dagger}_{\mathbf{q}\mu}|0\rangle$.

На рисунке 2 штриховой линией показан закон дисперсии $\omega_{\mathbf{q}\mu}$, а цветом – распределение полного спектрального веса $A(\mathbf{q},E) = A_{xx}(\mathbf{q},E) + A_{yy}(\mathbf{q},E)$. В верхнем ряду приведены результаты расчета в отсутствие электрон-фононного взаимодействия, в фазе (a) и вне фазы (b), (c) экситонного конденсата. Везде вне фазы экситонного конденсата спектр имеет щель (рис. 2b, c), которая обращается в нуль на границе фазового перехода второго рода, что согласуется с общими представлениями о том, что ниже точки фазового перехода должна возникнуть бесщелевая голдстоуновская мода (рис. 2a), описывающая коллективные возбуждения в фазе экситонного конденсата. Спектр на рис. 2b, c описывает коллективные с точки зрения электронной (фермиевской) системы возбуждения, но к нему можно относиться как к спектру квазичастичных (одночастичных) возбуждений системы бозе-частиц, описываемых эффективным гамильтонианом (18). Появлению бесщелевой голдстоуновской моды (рис. 2a) предшествует закрытие щели в спектре квазичастичных экситонных возбуждений (рис. 2b, c).

Диагональное электрон-фононное взаимодействие $g_1$ не приводит к качественным изменениям в спектре. Напротив, недиагональное электрон-фононное взаимодействие $g_2$ (в нижнем ряду на рис. 2 приведены результаты расчета при наличии только недиагонального электрон-фононного взаимодействия ($g_2 = 1.25J$) в области (d) и вне области (e), (f) экситонного упорядочения) приводит к открытию щели в спектре коллективных возбуждений (рис. 2d). В этом случае бозевский спектр возбуждений – одночастичных экситонных (рис. 2e, f) и коллективных в экситонной фазе (рис. 2d) – по обе стороны точки фазового перехода имеет щель. Спектр одиночных (одночастичных) возбуждений был рассчитан нами в работе [40] методом двухвременных температурных функций Грина и полностью согласуется со спектром, полученным обобщенным методом спиновых волн в настоящей работе.

Наличие щели в спектре коллективных и одночастичных возбуждений, как мы увидим ниже, играет ключевую роль в фотоусилении и фотоиндуцировании экситонного упорядочения.

**5. Фотоусиление.** Добавим к (19) слагаемое, описывающее взаимодействие с внешним излучением:

$$\hat{H}(t) = \hat{H} + \hat{V}(t), \tag{37}$$

где

$$\hat{V}(t) = E(t)\sum_{i}\left(c^{\dagger}_{1i\gamma}c_{0i\gamma} + c^{\dagger}_{0i\gamma}c_{1i\gamma}\right). \tag{38}$$

Внешнее поле $E(t)$ в (38) зададим в виде цуга $E(t) = E_0 \sin(\Omega t)\exp\left[-(t-t_p)^2 \big/ \left(2\sigma_p^2\right)\right]$ с $\Omega = 6\tau_0^{-1}$, $\sigma_p = 3\tau_0$, $t_p = 25\tau_0$ и $E_0 = 0.15J$, где $\tau_0 = 10^{-12}$ с.

Для получения замкнутой системы уравнений движения для экситонного параметра порядка в уравнении $\dot{\hat{\phi}}_i = -i\left\langle\left[\hat{\phi}_i, \hat{H}(t)\right]\right\rangle$ используем расцепление, соответствующее приближению среднего поля. Другими словами, вместо (18) в (37) будем использовать (22), с зависящим от времени экситонным параметром порядка $\phi(t)$ (зависящее от времени приближение среднего поля). Кроме того, используем приближение $\left(b^{\dagger}_i + b_i\right)\left(c^{\dagger}_{i,1}c_{i,0} + c^{\dagger}_{i,0}c_{i,1}\right) \to X(t)\left(c^{\dagger}_{i,1}c_{i,0} + c^{\dagger}_{i,0}c_{i,1}\right) + 2\mathrm{Re}\phi(t)\left(b^{\dagger}_i + b_i\right)$ [13], где $X(t) = \left\langle b^{\dagger}_i + b_i\right\rangle$. При таком расцеплении уравнений движения теряется информация о спектре коллективных возбуждений (рис. 2). Чтобы сохранить кооперативность и учесть наличие коллективных возбуждений, добавим к гамильтониану (22) малый межузельный перескок $\sum_{\langle i,j\rangle,\lambda=0,1} t_{\lambda} c^{\dagger}_{\lambda i} c_{\lambda j}$

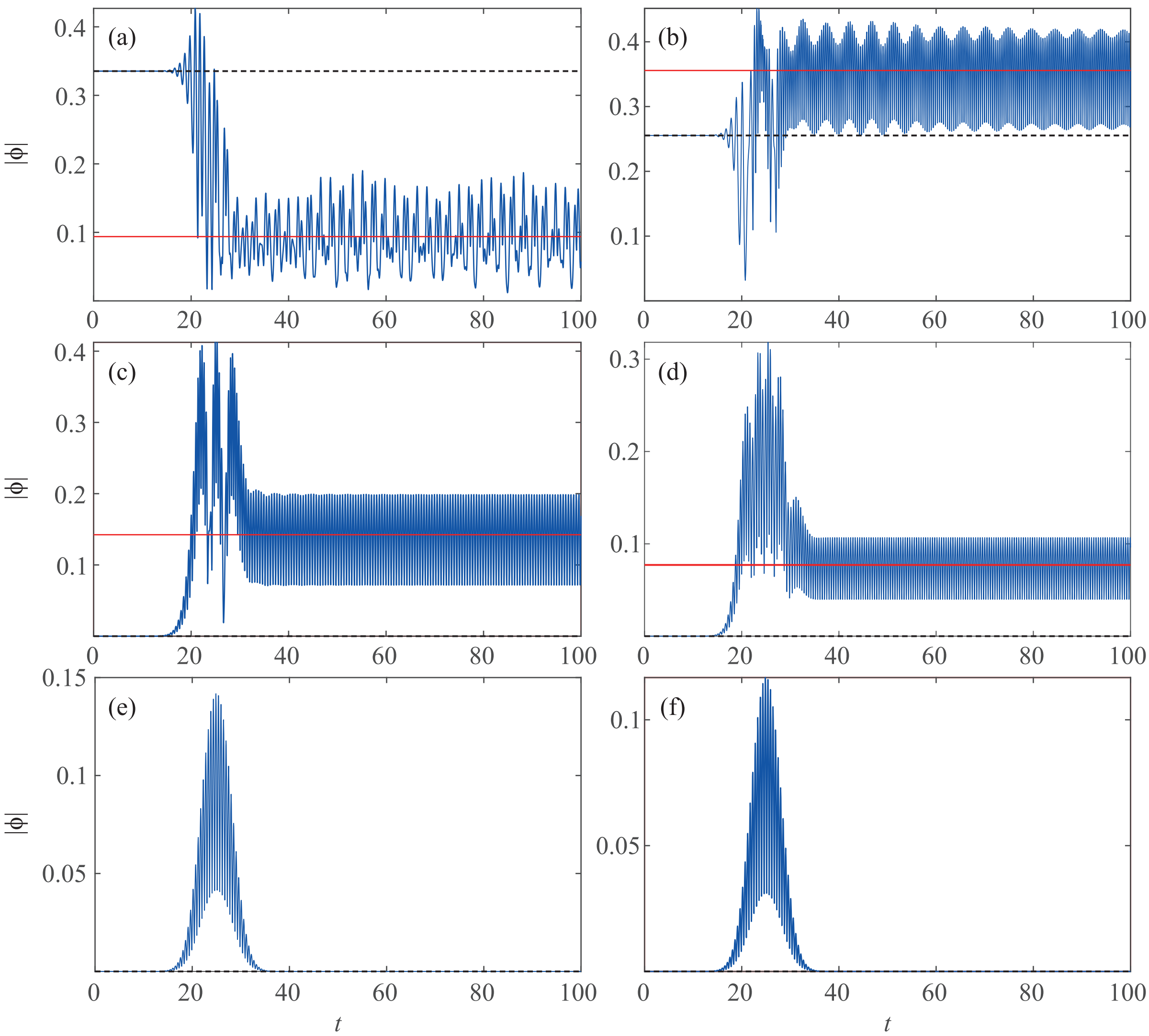


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость экситонного параметра порядка $|\phi|$ от времени после воздействия внешнего импульса излучения. Слева приведены результаты расчета в отсутствие электрон- фононного взаимодействия при $\varepsilon_S/J = 1.5$ (a), 2.5 (c) и 3.5 (e). Справа приведены результаты расчета при наличии недиагонального электрон- фононного взаимодействия ($g_2 = 1.25J$) для $\varepsilon_S/J = 2$ (b), 3 (d) и 4 (f). Начальное термодинамически равновесное состояние отмечено штриховой линией. Красной сплошной линией показано среднее значение, около которого осциллирует параметр порядка после выключения внешнего излучения. Время $t$ указано в единицах $\tau_0 = 10^{-12}$ с. Расчеты выполнены для следующего набора параметров: $z = 4$, $J = 28$ K, $J''_{ex} = -0.5J$

($t_\lambda = (-1)^{\lambda+1} 0.07J$), тогда в представлении волнового вектора будем иметь:

$$\dot{\phi}_{\mathbf{q}}(t) = -i\varepsilon_S(\mathbf{q})\phi_{\mathbf{q}}(t) - \\ - i\left\{zJ'_{ex}\phi(t) + zJ''_{ex}\phi^*(t) + g_2X(t) + E(t)\right\}\Delta n_{\mathbf{q}}(t); \tag{39}$$

$$\Delta\dot{n}_{\mathbf{q}}(t) = 4zJ'_{ex}\left[\mathrm{Re}\phi(t)\,\mathrm{Im}\phi_{\mathbf{q}}(t) - \mathrm{Re}\phi_{\mathbf{q}}(t)\,\mathrm{Im}\phi(t)\right] + \\ + 4zJ''_{ex}\left[\mathrm{Re}\phi(t)\,\mathrm{Im}\phi_{\mathbf{q}}(t) + \mathrm{Re}\phi_{\mathbf{q}}(t)\,\mathrm{Im}\phi(t)\right] + \\ + 4\left[g_2X(t) + E(t)\right]\mathrm{Im}\phi_{\mathbf{q}}; \tag{40}$$

$$\ddot{X}(t) = -\omega_{0(2)}^2X(t) - 2g_2\omega_{0(2)}\left[\phi(t) + \phi^*(t)\right], \tag{41}$$

где $\Delta n_{\mathbf{q}}(t) \equiv \left\langle c_{0\mathbf{q}}^\dagger c_{0\mathbf{q}}\right\rangle - \left\langle c_{1\mathbf{q}}^\dagger c_{1\mathbf{q}}\right\rangle$, $\phi_{\mathbf{q}}(t) \equiv \left\langle c_{0\mathbf{q}}^\dagger c_{1\mathbf{q}}\right\rangle$, $\phi(t) = \frac{1}{N}\sum_{\mathbf{q}}\phi_{\mathbf{q}}(t)$ и $\varepsilon_S(\mathbf{q}) \equiv (t_{1\mathbf{q}} - t_{0\mathbf{q}}) + \varepsilon_S$.

На рисунке 3 приведены результаты решения системы уравнений (39)–(41) при $g_2 = 0$ (слева) и при $g_2 = 1.25J$ (справа). Далеко вне экситонной области (рис. 3e, f) в обоих случая система после выключения внешнего излучения возвращается в исходное термодинамически равновесное состояние, отмеченное штриховой линией на всех рисунках. Вблизи экситонной области (рис. 3c, d) после выключения внешнего воздействия параметр порядка испытывает временные осцилляции около среднего значения, отмеченного красной сплошной линией на всех рисунках, отличного и больше равновесного (фотоиндуцирование экситонного упорядочения). Наконец в экситонной области (рис. 3a, b) мы наблюдаем два противоположных результата: в отсутствии электрон-фононного взаимодействия (рис. 3a) происходит уменьшение параметра порядка, а при $g_2 = 1.25J$ (рис. 3b) имеет место фотоусиление экситонного конденсата. Наблюдаемое поведение можно понять, используя представление о спектре коллективных возбуждений (рис. 2). При $g_2 = 0$ в экситонной фазе (рис. 3a) наличие безмассовых голдстоуновских мод ведет к бесщелевому энергетическому спектру системы (рис. 2a), поэтому любое малое внешнее воздействие приводит к возбуждению коллективных мод и уменьшению параметра порядка (рис. 3a). В отсутствии релаксационных и диссипативных процессов в уравнениях движения (39)–(41), система остается в возбужденном состоянии после выключения накачки. При $g_2 = 1.25J$ в экситонной фазе (рис. 3b) в спектре возбуждений открывается щель (рис. 2d) и возбуждение коллективных мод в этом случае становится затруднительным. Внешнее излучение приводит к изменению основного состояния – его временной зависимости и большему смешиванию состояний “0” и “1”. Вне экситонной области в обоих случаях (рис. 3c, d) в спектре уже одиночных экситонных возбуждений также имеется щель (рис. 2b, e), поэтому мы наблюдаем фотоиндуцирование экситонного конденсата (рис. 3c, d). Далеко вне экситонный фазы (при больших $\varepsilon_S/J$, рис. 3e, f) энергетический интервал между состояниями “0” и “1” становится непреодолимо большим и фотоиндуцирование экситонного конденсата становится невозможным.

Как уже отмечалось выше, существует довольно сильная взаимосвязь между экситонным и магнитным упорядочением [35], поэтому изменение экситонного конденсата неизбежно приведет к отклику магнитной подсистемы.

Мы надеемся, что наша работа послужит стимулом для дальнейших экспериментальных исследований сильно коррелированных систем со спиновым кроссовером с применением современных методов спектроскопии накачки-зондирования с высоким временным разрешением.

Исследование выполнено за счет средств гранта Российского научного фонда # 22-22-20007, Красноярского краевого фонда науки.

1. D. Fausti, R. I. Tobey, N. Dean, S. Kaiser, A. Dienst, M. C. Hoffmann, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, and A. Cavalleri, Science **331**(6014), 189 (2011).
2. S. Kaiser, C. R. Hunt, D. Nicoletti, W. Hu, I. Gierz, H. Y. Liu, M. Le Tacon, T. Loew, D. Haug, B. Keimer, and A. Cavalleri, Phys. Rev. B **89**, 184516 (2014).
3. M. Mitrano, A. Cantaluppi, D. Nicoletti, S. Kaiser, A. Perucchi, S. Lupi, P. Di Pietro, D. Pontiroli, M. Ricco, S. Clark, D. Jaksch, and A. Cavalleri, Nature **530**, 461 (2016).
4. R. Matsunaga, Y. I. Hamada, K. Makise, Y. Uzawa, H. Terai, Z. Wang, and R. Shimano, Phys. Rev. Lett. **111**, 057002 (2013).
5. R. Matsunaga, N. Tsuji, H. Fujita, A. Sugioka, K. Makise, Y. Uzawa, H. Terai, Z. Wang, H. Aoki, and R. Shimano, Science **345**(6201), 1145 (2014).
6. R. Matsunaga, N. Tsuji, K. Makise, H. Terai, H. Aoki, and R. Shimano, Phys. Rev. B **96**, 020505 (2017).
7. T. Rohwer, S. Hellmann, M. Wiesenmayer, C. Sohrt, A. Stange, B. Slomski, A. Carr, Y. Liu, L. M. Avila, M. Kallane, S. Mathias, L. Kipp, K. Rossnagel, and M. Bauer, Nature **471**, 490 (2011).
8. S. Hellmann, T. Rohwer, M. Kallane, K. Hanff, C. Sohrt, A. Stange, A. Carr, M. Murnane, H. Kapteyn, L. Kipp, M. Bauer, and K. Rossnagel, Nat. Commun **3**, 1069 (2012).
9. M. Porer, U. Leierseder, J.-M. Menard, H. Dachraoui, L. Mouchliadis, I. E. Perakis, U. Heinzmann, J. Demsar, K. Rossnagel, and R. Huber, Nature Mater **13**, 857 (2014).
10. D. Golež, P. Werner, and M. Eckstein, Phys. Rev. B **94**, 035121 (2016).
11. S. Mor, M. Herzog, D. Golež, P. Werner, M. Eckstein, N. Katayama, M. Nohara, H. Takagi, T. Mizokawa, C. Monney, and J. Stähler, Phys. Rev. Lett. **119**, 086401 (2017).
12. D. Werdehausen, T. Takayama, M. Hoppner, G. Albrecht, A. W. Rost, Y. Lu, D. Manske, H. Takagi, and S. Kaiser, Sci. Adv. **4**, eaap8652 (2018).
13. Y. Murakami, D. Golež, M. Eckstein, and P. Werner, Phys. Rev. Lett. **119**, 247601 (2017).
14. J. Nasu, T. Watanabe, M. Naka, and S. Ishihara, Phys. Rev. B **93**, 205136 (2016).
15. J. Kuneš, J. Phys. Condens. Matter **27**, 333201 (2015).
16. P. Werner and A. J. Millis, Phys. Rev. Lett. **99**, 126405 (2007).
17. R. Suzuki, T. Watanabe, and S. Ishihara, Phys. Rev. B **80**, 054410 (2009).
18. L. Balents, Phys. Rev. B **62**, 2346 (2000).
19. T. Kaneko and Y. Ohta, Phys. Rev. B **90**, 245144 (2014).
20. J. Kuneš and P. Augustinský, Phys. Rev. B **89**, 115134 (2014).
21. A. Sotnikov and J. Kuneš, Sci. Rep. **6**, 30510 (2016).

22. T. Tatsuno, E. Mizoguchi, J. Nasu, M. Naka, and S. Ishihara, J. Phys. Soc. Jpn. **85**(8), 083706 (2016).
23. G. Khaliullin, Phys. Rev. Lett. **111**, 197201 2013).
24. A. Ikeda, Y. H. Matsuda, K. Sato, Y. Ishii, H. Sawabe, D. Nakamura, S. Takeyama, and J. Nasu, Nat. Commun. **14**, 1744 (2023).
25. S. Londo, S. Biswas, I. V. Pinchuk, A. Boyadzhiev, R. K. Kawakami, and L. R. Baker, J. Phys. Chem. C **126**, 2669 (2022).
26. T. K. Ekanayaka, K. P. Maity, B. Doudin, and P. A. Dowben, Nanomaterials **12**(10), 1742 (2022).
27. J. Kanamori, Prog. Theor. Phys. **30**(3), 275 (1963).
28. J. Hubbard, Proc. R. Soc. A **277**(1369), 237 (1964).
29. R. O. Zaitsev, Sov. Phys. JETP **43**, 574 (1976).
30. K. A. Chao, J. Spalek, and A. M. Oles, J. Phys. C **10**(10), L271 (1977).
31. V. A. Gavrichkov, S. I. Polukeev, and S. G. Ovchinnikov, Phys. Rev. B **95**, 144424 (2017).
32. V. V. Val'kov and S. G. Theor. Math. Phys. **50**(3), 466 (1982).
33. S. V. Vonsovskii and M. S. Svirskii, Sov. Phys. JETP **20**(4), 914 (1965).
34. V. M. Agranovich and B. S. Toshich, JETP **26**, 104 (1968).
35. Y. S. Orlov, S. V. Nikolaev, and S. G. Ovchinnikov, Письма в ЖЭТФ **117**, 704 (2023).
36. M. J. R. Hoch, S. Nellutla, J. van Tol, E. S. Choi, J. Lu, H. Zheng, and J. F. Mitchell, Phys. Rev. B **79**, 214421 (2009).
37. F. P. Onufrieva, Sov. Phys. JETP **62**, 1311 (1985).
38. J. Nasu and S. Ishihara, Phys. Rev. B **88**, 205110 (2013).
39. J. Colpa, Physica A **93**, 327 (1978).
40. Y. S. Orlov, S. V. Nikolaev, V. I. Kuz'min, A. E. Zarubin, and S. G. Ovchinnikov, Phys. Rev. B **106**, 235120 (2022).