Письма в ЖЭТФ, том 109, вып. 1, с. 43 – 47

Нерезонансное возбуждение бозе–эйнштейновского конденсата магнонов в $MnCO_3$

Ю. М. Буньков[+1)], *А. В. Клочков*[+*], *Т. Р. Сафин*[+], *К. Р. Сафиуллин*[+*], *М. С. Тагиров*[+*]

[+]*Казанский федеральный университет, 420008 Казань, Россия*

[*]*Институт прикладных исследований, Академия наук РТ, 420111 Казань, Россия*

Поступила в редакцию 7 ноября 2018 г.
После переработки 7 ноября 2018 г.
Принята к публикации 8 ноября 2018 г.

Проведены исследования связанной ядерно-электронной прецессии в $MnCO_3$ при нерезонансном возбуждении. Результаты экспериментов однозначно подтверждают формирование Бозе конденсата магнонов. Получены эмпирические формулы, описывающие образование этого конденсата.

DOI: 10.1134/S0370274X19010089

Магнитный резонанс в системах связанных ядерно-электронных колебаний в слабоанизотропных антиферромагнетиках привлекает большой интерес на протяжении более полувека. Данные системы обладают так называемым динамическим сдвигом частоты (ДСЧ) – зависимостью частоты резонанса от величины отклонения намагниченности ядер от равновесной ориентации. Этот эффект наиболее сильно проявляется в легкоплоскостном антиферромагнетике $MnCO_3$, а также в других антиферромагнетиках с ионами Mn. Частота ядерного магнитного резонанса (ЯМР) ^{55}Mn составляет порядка 600 МГц из-за сильного сверхтонкого поля, что близко к частоте антиферромагнитного резонанса в слабом внешнем поле. В результате гибридизации, частоты связанных ядерно-электронных колебаний расталкиваются и возникает сдвиг частоты, который зависит от проекции ядерной намагниченности на направление сверхтонкого поля. В частности, для квазиядерной моды колебаний частота резонанса описывается уравнениями [1–3]:

$$\omega_k^n(\beta) = \omega^{n0} - \frac{\omega_p(\beta)}{1+(kr_0)^2}, \quad \omega^{n0} = \gamma_n(H + H_{hf}^n); \quad (1)$$

$$\omega_p(\beta) = \frac{\omega^{n0} H_{ex} H_{ex}^e m \cos\beta}{2H(H+H_D)M}, \quad H_{hf}^n = A\gamma_n M, \qquad (2)$$

где γ_n – гиромагнитное отношение ядер, ω^{n0} – несмещенная частота ЯМР в сверхтонком поле H_{hf}^n, $\omega_P(\beta)$ – сдвиг частоты однородных колебаний, зависящий от угла β – отклонения прецессирующей ядерной намагниченности, ω_k^n – частота магнонов с волновым вектором $\mathbf{k}$, H – внешнее магнитное поле, лежащее в легкой плоскости намагничивания, A – константа сверхтонкого взаимодействия, $M \equiv |\mathbf{M}|$ и $m \equiv |\mathbf{m}|$ – электронная и ядерная намагниченности соответственно, H_{hf}^n и H_{hf}^e – сверхтонкое поле на ядрах и электронах, H_{ex} и H_D – обменное поле и поле Дзялошинского в антиферромагнетике $MnCO_3$. Данная система является эталонной моделью для исследования эффектов нелинейного магнитного резонанса. В частности, в ней был обнаружен сдвиг частоты более 75 % от частоты линейного ЯМР [4]. Сильная зависимость частоты прецессии от угла отклонения намагниченности приводит к новым механизмам формирования спинового эхо – частотному [5] и параметрическому эхо [6, 7].

Другими магнитными системами, в которых частота прецессии зависит от величины отклонения намагниченности, являются, в частности, антиферромагнитные фазы сверхтекучего ^{3}He и ферриты с большими полями размагничивания. В этих системах было обнаружено явление бозе-эйнштейновской конденсации (БЭК) магнонов, природа и даже существование которого вызывает дискуссии. Впервые образование когерентного состояния прецессирующей намагниченности было обнаружено в ^{3}He–B [8], в котором ДСЧ имеет диполь-дипольную природу [9]. Образование магнонного БЭК выражается в спонтанном формировании долгоживущего сигнала индукции (ДСИ), длительность которого на несколько порядков больше чем следует из неоднородности линии магнитного резонанса. Затем это явление было обнаружено в ^{3}He–A в деформированном аэрогеле [10], в ^{3}He–P [11] и в рассматриваемых здесь

1)e-mail: yury.bunkov@neel.cnrs.fr

системах [12, 13]. В недавних экспериментах в пленке железо-иттриевого граната был также обнаружен долгоживущий сигнал индукции [14].

Согласно представлению о магнонах, как о Бозе квазичастицах, магнонный БЭК возникает при условии, что плотность магнонов превышает критическую плотность $\mathrm{N_{BEC}}$ [15, 16]:

$$N_{\mathrm{BEC}} \approx \left(\frac{k_{\mathrm{B}} T_M m_m}{k_0 \hbar^2}\right)^{3/2}, \tag{3}$$

где k_{B} – константа Больцмана, m_m – масса магнонов, $k_0 = 3.31$ – константа, связанная с формированием БЭК. Тепловые магноны не могут достичь такой концентрации, однако она может быть достигнута неравновесными магнонами, возбуждаемыми методами магнитного резонанса, что и было продемонстрировано в экспериментах, в которых обнаружили ДСИ.

Однако для наблюдения ДСИ недостаточно иметь концентрацию магнонов выше N_{BEC}, необходимо также наличие ДСЧ, т.е. зависимости частоты прецессии от плотности магнонов. Более того, его частота должна увеличиваться при увеличении числа магнонов, т.е. увеличиваться химический потенциал системы [17]. Это условие соответствует отталкиванию квазичастиц и выполняется в перечисленных ранее экспериментах. В противоположном случае, когда увеличение числа магнонов приводит к уменьшению частоты, как, например, в свободном ^{3}He–A, магноны притягиваются, что приводит к неустойчивости однородной прецессии [18, 19]. При образовании БЭК разница между его частотой и частотой резонанса при малом возбуждении $\Delta\omega$ играет роль энергетической щели, которая определяет упругость магнонного конденсата. Однородный БЭК возникает, когда эта щель больше чем неоднородность магнитного поля. В условиях импульсного резонанса эта щель определяется плотностью магнонов, возбужденных радиочастотным (РЧ) импульсом. В случае непрерывного магнитного резонанса частота БЭК соответствует частоте РЧ накачки, которая устанавливает химический потенциал системы и, соответственно, плотность неравновесных магнонов.

Критика подобного рассмотрения магнонного БЭК часто сводится к тому, что сигнал индукции или сигналы абсорбции и дисперсии можно, в принципе, качественно объяснить из уравнений магнитной прецессии. В данной статье мы обращаем внимание на эксперимент, результаты которого нельзя объяснить даже качественно, не прибегая к представлениям об образовании магнонного БЭК. Эксперименты ставились на квазиядерной моде магнитного резонанса в антиферромагнетике $\mathrm{MnCO_3}$. Экспериментальная установка описана в [20, 21]. Образец помещался в резонатор, на который подавалась РЧ накачка на частоте $\omega_{\mathrm{RF}}/2\pi = 568.6$ МГц. При мощности РЧ накачки в 100 мВт амплитуда РЧ поля на образце была около 0.3 Э. Магнитное поле выбиралось так, чтобы резонансная частота при малом возбуждении была существенно ниже частоты РЧ поля. Разница между этими частотами и являлась величиной расстройки (сдвига) частоты. С противоположной стороны резонатора располагалась приемная катушка, с помощью которой наблюдался РЧ сигнал, прошедший через резонатор. На рисунке 1 показаны стробоскопические записи сигнала, прошедшего через резонатор, в котором находился образец $\mathrm{MnCO_3}$. Мощность и сдвиг частоты РЧ поля показаны на подписи к рисункам.

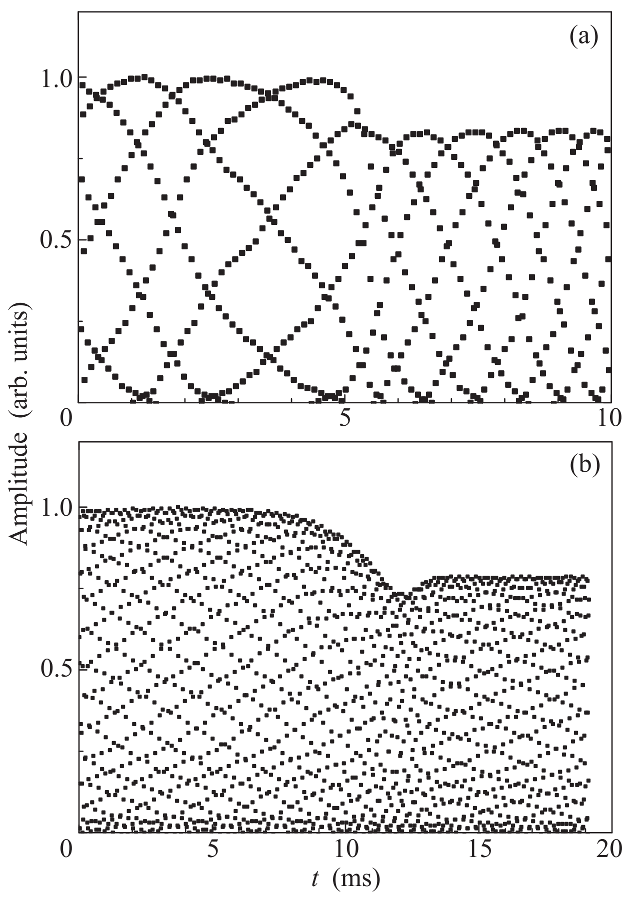

Рис. 1. Стробоскопическая запись сигнала, прошедшего через резонатор. (a) – Мощность РЧ импульса $P = 20$ мВт, сдвиг частоты от резонанса $\Delta\omega/2\pi = 53.1$ МГц. (b) – Мощность РЧ импульса $P = 40$ мВт, сдвиг частоты от резонанса $\Delta\omega/2\pi = 134.6$ МГц

На рисунке 1 показаны стробоскопические записи биений между РЧ сигналом и частотой записывающего устройства при двух значениях РЧ мощности. Показана только часть точек для лучшей визуализации этих биений. Видно, что через некоторое время после включения накачки частота начинает плавно меняться, и затем происходит резкая перестройка параметров сигнала. Нами были измерены времена задержки процесса перестройки при разных мощностях и сдвигах частоты. Результаты показаны на рис. 2.

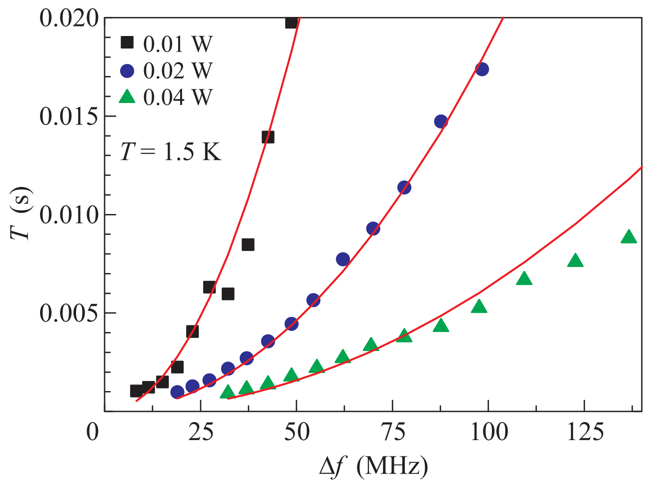

Рис. 2. (Цветной онлайн) Время перестройки проходящего РЧ сигнала от его мощности и сдвига частоты. Непрерывными линиями показаны результаты эмпирической зависимости с одинаковыми параметрами для всех трех кривых

Экспериментальные данные имеют квадратичную зависимость от сдвига частоты и экспоненциальную от величины подаваемого РЧ поля ($\sqrt{P}$) и хорошо описываются формулой с едиными параметрами $A_0 = 3.73 \cdot 10^{-7}$ с и $C = 0.50 \pm 0.02$ Вт$^{1/2}$:

$$t(\Delta\omega) = A_0^3 \exp(C/\sqrt{P}) \cdot (\Delta\omega/2\pi)^2. \qquad (4)$$

Мы предполагаем, что под действием РЧ поля происходит возбуждение неравновесных магнонов, в результате которого изменяется намагниченность S_z ядерной подсистемы, так что спиновая система попадает в резонанс с РЧ полем. Однако после выключения РЧ поля наблюдается долгоживущий сигнал индукции, причем его амплитуда тем больше, чем больше разность частот между РЧ полем и исходной частотой ЯМР. Более того, амплитуда сигнала индукции существенно превышает индукцию, получаемую при резонансном возбуждении как короткими так и длинными РЧ импульсами. На рисунке 3 показана амплитуда сигнала индукции после выключения накачки длительностью 1 с. Если в результате РЧ накачки образуется когерентное состояние, в котором вся намагниченность прецессирует однородно и отклонена на угол β, при этом частота прецессии равна частоте РЧ накачки, то амплитуда сигнала должна быть пропорциональна $\sin(\beta)$:

$$\sin\beta = \sqrt{1-\cos^2\beta} = \sqrt{1-(\frac{\omega^{n0}-\omega_{\rm RF}}{\omega^{n0}-\omega^{n}})^2}. \qquad (5)$$

Именно такую зависимость мы и видим на рис. 3. Более того, угол отклонения прецессирующей намагниченности достигает 32°. Как этот угол, так и амплитуда сигнала индукции существенно превосходят величины, которые удается получить при резонансном возбуждении.

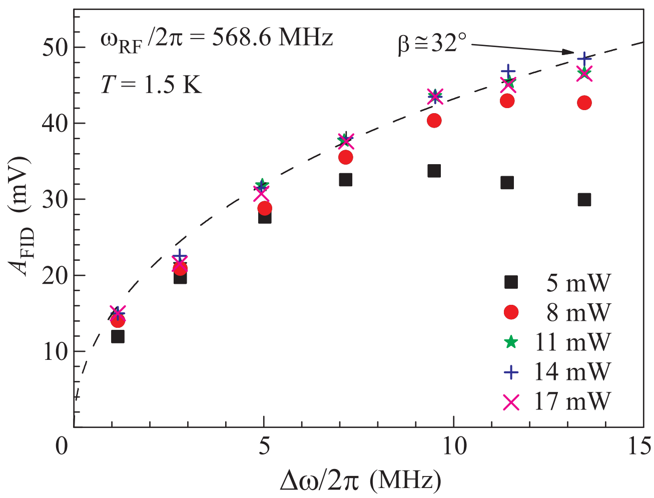

Рис. 3. (Цветной онлайн) Амплитуда сигнала индукции после выключения РЧ накачки. Пунктирная линия соответствует уравнению (5). Отклонение величины сигнала от теоретической кривой при малой мощности и большом сдвиге частоты, вероятно связано с тем, что магнонный БЭК в этих условиях заполняет только часть образца. Символам соответствует мощность радиочастотной накачки: ● – 5 мВт, ⊠ – 8 мВт, ⋆ – 11 мВт, + – 14 мВт и × – 17 мВт

Итак, в случае нагрева ядерной подсистемы амплитуда сигнала индукции должна слабо зависеть от сдвига частоты и линейно зависит от амплитуды РЧ поля. В наших экспериментах амплитуда сигнала индукции не зависит от амплитуды РЧ поля, зато сильно зависит от сдвига частоты, причем меняется по закону, который соответствует образованию магнонного БЭК.

Таким образом, мы экспериментально показали, что при нерезонансном возбуждении в данной системе образуется магнонный БЭК, который после выключения РЧ поля излучает типичный долгоживущий сигнал индукции. В работах [1–3] данная спиновая система рассматривалась в рамках модели косвенного взаимодействия парамагнитной системы ядер через магнитоупорядоченную систему электронов. При этом процессы магнитной релаксации описывались в рамках модели Блоха. Естественно, результаты наших экспериментов показывают несостоятельность данной модели. В современных экспериментах по наблюдению сигналов непрерывного ЯМР было показано, что сигналы абсорбции и дисперсии описываются уравнениями Ландау–Лифшица–Гильберта, а не уравнениями Блоха [22]. Это связано с тем, что упорядоченная электронная подсистема играет важную роль в связанной ядерно-электронной прецессии. Она определяет процессы образования спиновых волн и релаксации, и, следовательно, магнонного БЭК [23].

На рисунке 4 схематически представлен процесс образования БЭК при нерезонансном возбуждении. В начальный момент РЧ поле может возбуждать только спиновые волны с большим волновым вектором **k** (точка a на вставке рис. 4). Этот процесс возможен благодаря наличию примесей и дефектов в системе. Постановка данного эксперимента позволит в дальнейшем исследовать этот процесс количественно. Увеличение числа магнонов приводит к тому, что весь спектр спиновых волн начинает смещаться вверх. Чем ближе частота магнонов с $k = 0$ к частоте РЧ поля, тем эффективнее идет процесс возбуждения магнонов, который завершается, когда частоты сравниваются (точка b на вставке рис. 4). Этот процесс может сопровождаться образованием голдстоуновских колебаний [24]. Ими объясняется провал в амплитуде сигнала на рис. 1b. Полученный нами эмпирический закон возбуждения БЭК требует своего теоретического исследования. Образование магнонного БЭК в $MnCO_3$ подтверждается также и тем, что ДСИ подавляет сигналы спинового эхо [25], что невозможно в некогерентных системах. Теория нерезонансного возбуждения магнонов была построена в работе [26], однако она основывалась на уравнениях Блоха.

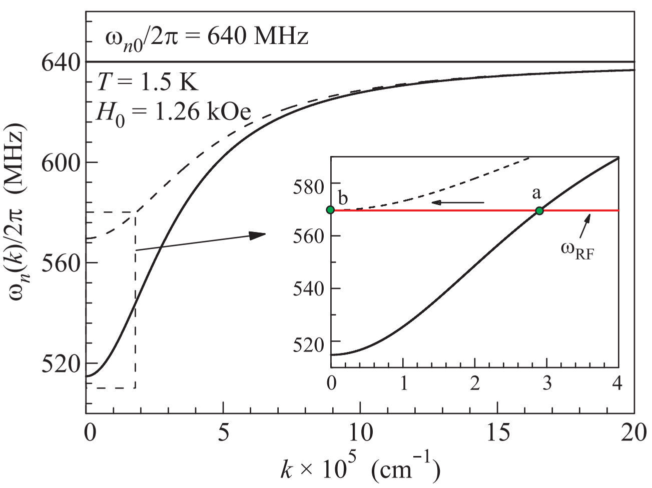

Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектр ядерных спиновых волн в антиферромагнетике $MnCO_3$. На вставке показано изменение спектра спиновых волн при образовании магнонного БЭК.

В заключение, бозе-эйнштейновский конденсат магнонов является упорядоченным состоянием, возникающим над равновесным состоянием магнетиков, в котором спонтанно нарушается вращательная симметрия магнонов. Оно характеризуется установлением дальнего порядка недиагональных элементов матрицы плотности магнонов и аналогично другим сверхтекучим состояниям, таким как сверхпроводимость, сверхтекучесть, атомарный БЭК [27]. Данное состояние характеризуется энергетической щелью равной разности частот прецессии магнонного БЭК и частотой магнитной системы при малом возбуждении. Именно эта щель определяет длину когерентности сверхтекучего магнитного тока, измеренную в экспериментах по критическому току и эффекту Джозефсона в антиферромагнитных фазах сверхтекучего ^{3}He [28–30]. Кроме того, Бозе конденсация магнонов подтверждается наблюдением голдстоуновских колебаний (аналог второго звука в ^{4}He) [24, 31, 32]. В данной статье мы экспериментально продемонстрировали принципиальное различие между возбуждением прецессии спинов в магнитоупорядоченных веществах и образованием БЭК неравновесных магнонов.

Авторы благодарны за полезные обсуждения Г.Е. Воловику, М.И. Куркину и В.С. Львову. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект #16-12-10359).

1. H. Suhl, Phys. Rev. **109**, 606 (1958).
2. T. Nakamura, Prog. Theor. Phys. **20**, 542 (1958).
3. P. D. De Gennes, P. A. Pincus, F. Hartmann-Boutron, and J. M. Winter, Phys. Revю **129**, 1105 (1963).
4. А. С. Боровик-Романов, Ю. М. Буньков, Б. С. Думеш, М. И. Куркин, М. П. Петров, В. П. Чекмарев, УФН **142**, 537 (1984).
5. Yu. M. Bunkov and B. S. Dumesh, Sov. Phys. JETP **68**, 1161 (1975).
6. Yu. M. Bunkov, JETP Lett. **23**, 244 (1976).
7. Yu. M. Bunkov and S. O. Gladkov, Sov. Phys. JETP **73**, 2181 (1977).

8. A. S. Borovik-Romanov, Yu. M. Bunkov, V. V. Dmitriev, and Yu. M. Mukharskiy, JETP Lett. **40**, 1033 (1984).
9. A. J. Leggett, Rev. Mod. Phys. **47**, 331 (1975).
10. P. Hunger, Y. M. Bunkov, E. Collin, and H. Godfrin, J. Low Temp. Phys. **158**, 219 (2010).
11. S. Autti, V. V. Dmitriev, J. T. Mäkinen, J. Rysti, A. A. Soldatov, G. E. Volovik, A. N. Yudin, and V. B. Eltsov, Phys. Rev. Lett. **121**, 025303 (2018).
12. Yu. M. Bunkov, E. M. Alakshin, R. R. Gazizulin, A. V. Klochkov, V. V. Kuzmin, T. R. Safin, and M. S. Tagirov, JETP Lett. **94**, 68 (2011).
13. Yu. M. Bunkov, E. M. Alakshin, R. R. Gazizulin, A. V. Klochkov, V. V. Kuzmin, V.S. L'vov, and M. S. Tagirov, Phys. Rev. Lett. **108**, 177002 (2012).
14. Yu. M. Bunkov, A. R. Farhutdinov, A. V. Klochkov, G. V. Mamin, S. B. Orlinskii, T. R. Safin, M. S. Tagirov, P. M. Vetoshko, and D. G. Zverev, arXiv: 1810.08051, to be published (2018).
15. R. R. Gazizulin, Yu. M. Bunkov, and V. L. Safonov, JETP Lett. **102**, 766 (2015).
16. Yu. M. Bunkov and V. L. Safonov, J. Magn. Magn. Mater. **452**, 30 (2018).
17. G. E. Volovik, J. Low Temp. Phys. **153**, 266 (2008).
18. A. S. Borovik-Romanov, Yu. M. Bunkov, V. V. Dmitriev, and Yu. M. Mukharskiy, JETP Lett. **39**, 469 (1984).
19. Yu. M. Bunkov, J. Low Temp. Phys. **185**, 399 (2016).
20. A. M. Alakshin, Yu. M. Bunkov, R. R. Gazizulin, A. V. Klochkov, V. V. Kuzmin, A. S. Nizamutdinov, T. R. Safin, and M. S. Tagirov, J. Phys. Conf. Ser. **324**, 012006 (2011).
21. E. M. Alakshin, Yu. M. Bunkov, R. R. Gazizulin, A. V. Klochkov, V. V. Kuzmin, R. M. Rakhmatullin, A. M. Sabitova, T. R. Safin, and M. S. Tagirov, Appl. Magn. Reson. **44**, 595 (2013).
22. L. V. Abdurakhimov, M. A. Borich, Yu. M. Bunkov, R. R. Gazizulin, D. Konstantinov, M. I. Kurkin, and A. P. Tankeyev, Phys. Rev. B **97**, 024425 (2018).
23. M. A. Borich, Yu. M. Bunkov, M. I. Kurkin, and A. P. Tankeev, JETP Lett. **105**, 24 (2017).
24. Yu. M. Bunkov, A. V. Klochkov, T. R. Safin, K. R. Safiullin, and M. S. Tagirov, JETP Lett. **106**, 677 (2017).
25. Yu. M. Bunkov, A. V. Klochkov, T. R. Safin, K. R. Safiullin, and M. S. Tagirov, Appl. Magn. Reson. **48**, 625 (2017).
26. M. I. Kurkin, U. G. Raidugin, V. N. Sedishkin, and A. P. Tankeev, Phys. Solid State **32**, 1577 (1990).
27. Yu. M. Bunkov and G. E. Volovik, *Novel Superfluids*, ed. by K. H. Bennemann and J. B. Ketterson, Oxford University press (2013), ch. IV.
28. Yu. M. Bunkov, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 164201 (2009).
29. J. A. Sauls, Yu. M. Bunkov, E. Collin, H. Godfrin, and P. Sharma, Phys. Rev. B **72**, 024507 (2005).
30. A. S. Borovik-Romanov, Yu. M. Bunkov, V. V. Dmitriev, and Yu. M. Mukharskiy, JETP Lett. **45**, 124 (1987).
31. Yu. M. Bunkov, V. V. Dmitriev, and Yu. M. Mukharskiy, JETP Lett. **43**, 168 (1986).
32. Yu. M. Bunkov, V. V. Dmitriev, and Yu. M. Mukharskiy, Physica B **178**, 196 (1992).