

# Эксперимент за пределами применимости теории Сула и Накамуры

Ю. М. Буньков<sup>+1)</sup>, Д. Константинов\*

<sup>+</sup> Российский Квантовый Центр, Сколково, 143025, Москва, Россия

\* Лаборатория Квантовой Динамики, Окинавский институт науки и технологий, Япония

Submitted 12 November 2019

Resubmitted 12 January 2020

В связи с экспериментальным обнаружением Бозе конденсации магнонов в связанной ядерно-электронной (ЯЭ) прецессии в антиферромагнетиках встал вопрос о её использовании для магноники и компьютерных вычислений. В частности привлекают относительно большие времена когерентности в этих системах по сравнению с традиционными образцами Железо-Иттриевого граната. Однако её описание в рамках модели Сула и Накамуры (СН) и уравнений Блоха противоречит возможности Бозе конденсации магнонов. В данной статье мы приводим результаты прямого эксперимента в антиферромагнитном  $\text{MnCO}_3$ , который показывает, что модель СН и уравнения Блоха не описывает адекватно ЯЭ прецессию при больших величинах возбуждения.

Экспоненциальный рост исследований и публикаций о свойствах магнонов в последние годы связан с возможным их применением в качестве альтернативы электронных приборов. В первую очередь это вызвано тем, что выделение джоулева тепла при протекании электрического тока поставило тепловой барьер для дальнейшей миниатюризации электронных компьютеров. Магноны могут служить потенциальным носителем информации при значительно меньшей потребляемой мощности так как их распространение не связано с движением электронов [1, 2]. Кроме того, для передачи и запоминания информации может использоваться не только амплитуда, но и частота и фаза магнонов, что позволяет применять векторные вычислительные алгоритмы [3, 4]. И, наконец, существование когерентных состояний магнонов (Бозе-Эйнштейновское состояние (БЭК) и спиновое сверхтекучее состояние [5]) позволяют использовать магноны в качестве элементов для квантовых компьютеров. При этом сверхтекучий спиновый ток подавляет неоднородное уширение линии магнитного резонанса, что на порядки увеличивает времена когерентности спиновой системы [6]. Кроме того, наличие спинового эффекта Джозефсона и спинового сверхтекучего тока [7] даёт возможность конструировать сверхтекучий кубита, аналогичный сверхпроводящему кубиту, успешно применённому в квантовом компьютере фирмы Гугл [8]. Спиновая природа магнонной сверхтекучести позволяет также конструировать спиновые кубиты параллельно со сверхтекучими, что существенно увеличивает возможности их использования для квантовых вычислений. Более того, сильная связь между магнонами и фотонами

<sup>1)</sup>e-mail: y.bunkov@rqc.ru

[9, 10] позволяет передавать информацию между этими системами и осуществлять фазирование их магнонных компонент.

Так как магноны являются квазичастицами с конечным временем жизни, это время должно быть достаточно для проведения манипуляций с информацией. Поэтому время когерентности является весьма важным параметром при выборе материала квантовой магноники. Конечно, антиферромагнитный сверхтекучий  $^3\text{He}$ , в котором постоянная затухания Гильберта составляет порядка  $10^{-8}$ , является очевидным рекордсменом по времени когерентности магнонов [11, 12]. Время жизни когерентного состояния в нём может достигать 2000 сек. [13]. Однако он существует при экстремально низких температурах ниже 2 мК. С другой стороны, время жизни магнонов в Железо-Иттриевом Гранате (ЖИГ), применяемом в основном для исследований магнонной динамики, составляет порядка 1 мксек. Недавно удалось получить долгоживущий сигнал индукции который однако живёт не более 3 мксек [14]. В связи с этим следует обратить внимание на систему связанных ядерно-электронных колебаний в антиферромагнетиках с большим динамическим сдвигом частоты (ДСЧ), таких как  $\text{MnCO}_3$ ,  $\text{CsMnF}_3$  и других. В этих системах когерентные свойства антиферромагнитных магнонов сочетаются с временами жизни парамагнитной ядерной подсистемы.

Традиционно эти системы рассматриваются в рамках модели косвенного взаимодействия, предложенной Сулом и Накамурой [15, 16]. Ядерный спин взаимодействует с электронным собственным иона через сверхтонкое взаимодействие. Это взаимодействие передается через систему упорядоченных элек-

тронных моментов другим ядрам на большое расстояние  $r_0$  за счет обменного взаимодействия и приводит к гибридизации линий ядерного и электронного резонанса. В этом случае электронная намагниченность полностью вовлечена в прецессию ядерных спинов. Частоты квазиядерных (ЯЭМР) и квазиэлектронных (ЭЯМР) магнитных резонансов расщепляются. Частота электронных магнонов увеличивается, а частота ядерных уменьшается. В частности этот сдвиг частоты очень велик в кубических и легкоплоскостных антиферромагнетиках с ионами марганца. Это связано с относительно небольшой частотой АФМР и высокой частотой ЯМР  $^{55}\text{Mn}$  (около 600 МГц) в сверхтонком поле. Энергия взаимодействия между ядерной и электронной ветвями определяется сверхтонким полем ядер действующим на электроны:

$$H_{hf}^e = A \gamma_e m_z = A \gamma_e m \cos \beta, \quad (1)$$

где  $\gamma_e$  гиромагнитное отношение для электронов  $m_z$  - проекция ядерной намагниченности на электронную, которая определяется ядерной намагниченностью  $m$  и углом отклонения  $\beta$ . В последнем случае можно говорить об интересном нелинейном явлении, о динамическом сдвиге частоты (ДСЧ), когда частота прецессии зависит от угла отклонения ядерной намагниченности [17]:

$$\omega^n = \omega^{n0} - \omega_{p0} \cos \beta. \quad (2)$$

Полный набор уравнений квазиядерной и квазиэлектронной прецессии для антиферромагнетиков с большой величиной ДСЧ, таких как  $\text{MnCO}_3$ ,  $\text{RbMnF}_3$ ,  $\text{CsMnF}_3$  и т.д. представлен в [18, 19]. В частности, уравнение для сдвига частоты квазиядерной моды колебаний:

$$\omega^n = \omega^{n0} \left( 1 - \frac{H_E H_n \cos \beta}{2H(H + H_D)} \frac{m}{M} \right), \quad (3)$$

где,  $H$  внешнее магнитное поле,  $H_E$  обменное поле,  $H_n$  сверхтонкое поле, действующее на ядра со стороны электронов и  $H_D$  магнитное поле Джалошинского которое равно около 4,4 кОэ в  $\text{MnCO}_3$  и нулю в  $\text{CsMnF}_3$ ,  $M \equiv |M|$  и  $m \equiv |m|$  величины электронной и ядерной намагниченности.

Применимость данного уравнения для рассматриваемых кристаллов была подтверждена многими экспериментальными результатами [20, 21, 22, 23, 24]. В частности, зависимость частоты от угла отклонения ядерной намагниченности была подтверждена в импульсных ЯМР экспериментах: путем формирования частотно-модулированного эха [25, 26] и измерениями спектра возбуждения методом параметрического эха [27, 28, 29].

Всвязи с аналогией между уравнениями движения намагниченности в рассматриваемых кристаллах и в антиферромагнитном сверхтекучем  $^3\text{He}$  Буньковым было предсказано существование спиновой сверхтекучести в этих кристаллах [30]. Это предположение вызвало критику оппонентов всвязи с тем, что ядерная подсистема находится в парамагнитном состоянии и должна описываться уравнениями Блоха, а не уравнениями Ландау-Лифшица для магнитоупорядоченных систем. Соответственно возбуждённая ядерная спиновая прецессия должна релаксировать с быстрой потерей поперечной ядерной намагниченности  $\cos \beta$ . В этих системах был обнаружен аналог нелинейного ферромагнитного резонанса, когда частота прецессии следует за частотой  $\gamma H$  при уменьшении поля [21]. А это возможно только если  $m \cos \beta$  уменьшается пропорционально  $H(H + H_D)$  (см. уравнение 3). Поскольку процесс является квазистационарным, простое объяснение основывалось на идее нагрева ядерной подсистемы, при угле отклонения ядерной намагниченности  $\beta$  близком к нулю [31]. Позже было найдено много противоречий с этим "очевидным" объяснением. Однако были сделаны только косметические поправки к сценарию нагрева [32, 33].

Целью данной работы является экспериментальное подтверждение того, что при непрерывной накачке и сканировании магнитного поля вниз увеличивается угол отклонения ядерной намагниченности  $\beta$  при сохранении её намагниченности и температуры ядерной подсистемы. А это значит, что квазиядерная мода связанных ядерно-электронных колебаний описывается уравнениями Ландау-Лифшица и, соответственно, модель Сула-Накамуры в этом случае не применима.

Эксперименты проводились в Окинавском институте науки и технологий на криостате растворения  $^3\text{He}$  в  $^4\text{He}$  в диапазоне температур 0,5 - 1 К. При более низких температурах времена установления спиновой температуры резко замедляются и достигают порядка  $10^4$  сек. при 0.1 К. [34]. Схема спектрометра представлена на Рис. 1. Детали установки и методики экспериментов описаны в [18]. Эксперименты проводились на образце  $\text{MnCO}_3$ , выращенном в институте Физических Проблем им. Капицы в Москве. В данной статье мы приводим результаты сравнения сигналов ЯМР, полученных в широком диапазоне температур.

Прежде всего была произведена калибровка линейных сигналов ЯЭМР при малом уровне ВЧ-возбуждения (-25 дБм). Результаты показаны на Рис. 2. Резонансное поле хорошо соответствует гео-

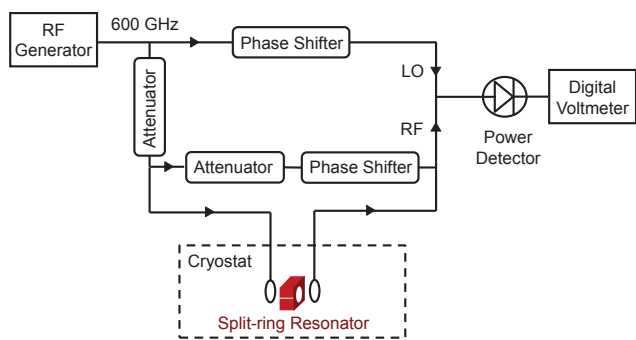


Рис. 1. Схема гомодинного ЯМР спектрометра использованного в эксперименте.

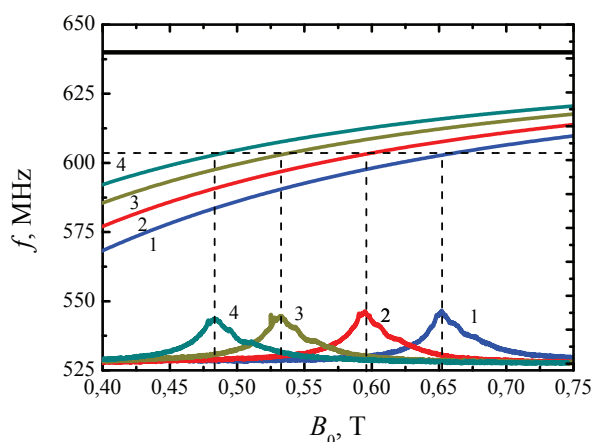


Рис. 2. Частотная зависимость ЯЭМР при разных температурах (сверху) и записи сигналы ЯЭМР при малой мощности возбуждения при температурах 640 мК (1), 742 мК (2), 877 мК (3) и 1010 мК (4).

ретическим предсказаниям для разных температур, показанным линиями. Амплитуда резонанса изменяется с температурой в соответствии с ядерной намагниченностью и изменением времени поперечной релаксации  $T_2$  для соответствующих температур. В частности, сигнал абсорбции пропорционален поперечной компоненте вектора ядерной намагниченности:

$$m_y = \gamma H_1 \frac{m_z(T_2)^{-1}}{(\omega^n - \omega)^2 + (T_2)^{-2}}, \quad (4)$$

где  $H_1$  амплитуда возбуждающего радиочастотного поля на ядрах, с учётом коэффициента усиления за счёт сверхтонкого взаимодействия.

Затем была увеличена мощность ВЧ возбуждения до +5 дБм и получены сигналы абсорбции и дисперсии при уменьшении внешнего магнитного поля при тех же температурах. На Рис. 3 и 4 показаны записи сигналов абсорбции и полной поперечной на-

магниченности прецессирующей спиновой системы (корень квадратный из квадратов сигналов абсорбции и дисперсии).

Давайте обратим внимание на зависимость сигнала абсорбции при температуре 0,64 К при сканировании поля, показанном на Рис. 3. В точке *A* величина сигнала соответствует равновесным условиям. При сканировании поля вниз сигнал растёт до точки *B* (кривая 1). Однако, если сдвиг частоты определяется только изменением температуры и, соответственно, намагниченности ядерной системы, то амплитуда сигнала должен соответствовать точке *B*<sub>1</sub>, которая получена как резонансный сигнал при данном поле, мощности накачки, и температуре ядерной системы. При дальнейшем сканировании поля мы приходим к точке *C*. Однако, если частота сигнала сдвинулась за счёт только нагрева ядерной системы, то он должен соответствовать точке *C*<sub>1</sub>, то есть резонансному сигналу при той же мощности накачки и температуре магнитной подсистемы. Огромная разница в величине сигналов говорит о том, что сдвиг частоты при сканировании поля возникает не за счёт уменьшения ядерной намагниченности а за счёт её отклонения на соответствующий угол. Те же рассуждения можно привести и для полного сигнала поперечной намагниченности, представленном на Рис. 4. При этом поправка на изменения времени релаксации за температурной зависимости сигналов при малой мощности (Рис. 2).

Возникает вопрос, почему ядерная намагниченность остается отклоненной, а не термализуется в условиях постоянной накачки ВЧ поля. Теоретическое объяснение этого эффекта было дано в работе [35]. Согласно этой работе все релаксационные процессы происходят в упорядоченной электронной подсистеме и естественно описываются уравнениями Ландау-Лифшица. А парамагнитная ядерная подсистема играет роль пассивного маятника, который, однако, опускает частоту прецессии в область низких частот. Эта теория уже нашла своё косвенное подтверждение в работе [18], где было проведено сравнение между описанием экспериментальных результатов уравнениями Блоха и уравнениями Ландау-Лифшица, с явным преимуществом последний. Из представленных здесь результатов следует, что сдвиг частоты определяется отклонением намагниченности на большие углы при непрерывной РЧ накачке, как показано на Рис 5.

Очень важным свойством магнонов ЯЭМР моды является их отталкивание. Действительно, при увеличении числа магнонов при отклонении намаг-

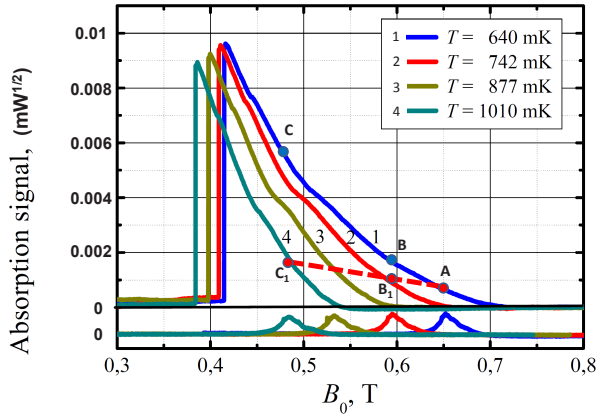


Рис. 3. Сигнал абсорбции при малом возбуждении (внизу) и при мощности возбуждения +5 дБмю. Пунктиром показана зависимость сигнала от температуры в случае применимости модели СН.

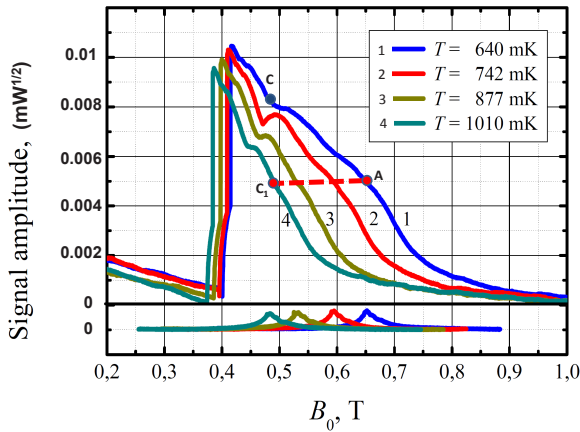


Рис. 4. Сигнал поперечной намагниченности при малом возбуждении (внизу) и при мощности возбуждения +5 дБм. Пунктиром показана зависимость сигнала от температуры в случае применимости модели СН.

ниченности частота прецессии увеличивается. При плотности магненов выше порога формирования магнного Бозе конденсата должен образовываться сверхтекучий спиновый домен с однородной прецессией. Формирование такого домена было напрямую продемонстрировано в сверхтекучем  $^3\text{He-A}$  [36, 37].

В наших экспериментах эти сигналы должны меняться аналогичным образом. Сигнал абсорбции изменяется в соответствии с этим сценарием, однако сигнал полной поперечной намагниченности оказывается существенно больше. В данном случае мы имеем дело со связанной ядерно-электронной прецессией. При этом основной сигнал излучается не ядерной подсистемой, а электронной подсистемой из-за

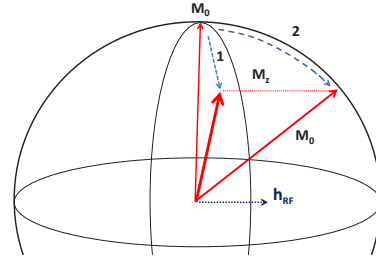


Рис. 5. Два сценария эволюции намагниченности при сканировании магнитного поля. 1) Сул - Накамуровский сценарий с релаксацией Блоха. 2) Траектория при сохранении модуля вектора ядерной намагниченности.

ее существенно большей намагниченности. Соотношение между ядерными и электронными сигналами, без учёта поля Дзялошинского, имеет вид [31]:

$$M_x = -4 \frac{M}{H} H_1 \cos \omega t + \frac{\gamma^2 H_E H_n}{\omega^2} m_x; \quad (5)$$

$$M_y = \frac{H_n}{H} m_y, \quad (6)$$

Отсюда следует, что сигнал поглощения, пропорциональный  $M_y$ , является просто усилением сигнала ядерной намагниченности. Наоборот, для дисперсионного сигнала, который пропорционален  $M_x$ , появляется дополнительный член из-за внешнего радиочастотного поля. Следовательно, для количественного описания сигналов нам необходимо провести полное теоретическое исследование сопряженной прецессии электронной и ядерной намагниченности в радиочастотном поле. Однако уже представленные результаты показывают, что динамика связанной ЯЭ прецессии не описывается моделью СН и уравнениями Блоха.

Таким образом из приведённых здесь экспериментов следует что нагрев ядерной подсистемы не может объяснить нелинейные сигналы ЯМР в антиферромагнетиках с большим ДСЧ. При достаточных углах отклонения намагниченности она обретает свойства спиновой сверхтекучей системы [38] которые были продемонстрированы в публикациях [19, 39, 40]. В частности были обнаружены такие явления как Голдстоуновские моды колебаний [41] и нерезонансное возбуждение [42], свойственные магнному БЭК. Таким образом данная магнная система является кандидатом для изготовления приборов на основе супермагноники и магнных сверхтекучих кубитов. Весьма интересной является возможность изготовле-

ния связанных кубитов на основе спиновой сверхтекучести и сверхпроводящих кубитов, нашедших свой применение в квантовых компьютерах.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект №19-12-00397). Экспериментальная часть работы выполнена в лаборатории квантовой динамики Окинавского института науки и технологий.

1. Y. Kajiwara, et al., *Nature*, **464**, 262 (2010).
2. A. Khitun, M. Bao, K. L. Wang, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43**, 264005 (2010).
3. D. Lachance-Quirion, Y. Tabuchi, A. Gloppe, K. Usami, and Y. Nakamura, *Applied Physics Express* **12**, 070101 (2019).
4. B. Rana, Y. Otani, *Communication Phys.*, <https://doi.org/10.1038/s42005-019-0189-6> (2019).
5. Yu. M. Bunkov, G. E. Volovik *Spin superfluidity and magnon BEC (Novel Superfluids)* ed. K. H. Bennemann and J. B. Ketterson, Oxford: University press (2013)
6. Yu. M. Bunkov, *J. Low Temp. Phys.*, **183**, 399 (2016).
7. Yu. M. Bunkov, *SPIN*, **9**, 1940005, DOI: 10.1142/S2010324719400058 (2019).
8. F. Arute, et al., *Nature* **574**, 505 (2019).
9. J. A. Haigh, A. Nunnenkamp, A. J. Ramsay, and A. J. Ferguson, *Phys. Rev. Lett.*, **117**, 133602 (2016).
10. L. V. Abdurakhimov, D. Konstantinov and Yu. M. Bunkov, *Phys. Rev.Lett.*, **114**, 226402 (2015).
11. Yu. M. Bunkov, et al., *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 3092 (1992).
12. S. Autti, V. B. Eltsov, G. E. Volovik, *Phys. Rev. Lett.*, **120**, 215301 (2018)
13. S. N. Fisher, G. R. Pickett, P. Skyba, N. Suramlishvili, *Phys. Rev. B*, **86**, 024506 (2012).
14. Yu. M. Bunkov, et al., *JETP Lett.*, **111**, 62 (2020).
15. H. Suhl, *Phys. Rev.* **109**, 606 (1958).
16. T. Nakamura, *Prog. Theor. Phys. (Kyoto)* **20**, 542, (1958).
17. P. G. De Gennes, et al., *Phys. Rev.*, **129**, 1105 (1963); *Journal of Applied Physics*, **34**, 1036 (1964).
18. L. V. Abdurakhimov, et al., *Phys. Rev. B*, **97**, 024425 (2018).
19. Yu. M. Bunkov, et al., *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 177002 (2012).
20. G. L. Witt, A. M. Portis, *Phys. Rev.*, **135**, 1616 (1964).
21. V. A. Tulin, *Sov. Phys. JETPh*, **55**, 831 (1968).
22. L. A. Prozorova, A. I. Smirnov, *Sov.Phys.JETPh*, **40**, 970 (1975).
23. A. S. Borovik-Romanov, Yu. M. Bunkov and B. S. Dumesh *Physica*, **86**, 1301 (1977).
24. A. S. Borovik-Romanov, et al., *Sov. Phys. Uspekhi*, **142**, 537 (1984).
25. Yu.M. Bunkov, B.S. Dumesh, *Sov. Phys. JETPh*, **41**, 576 (1975).
26. Yu.M.Bunkov, V.V.Dmitriev, *Sov. Phys. JETPh*, **53**, 1237 (1981).
27. Yu.M. Bunkov, *JETPh Lett.*, **23**, 244 (1976).
28. Yu.M.Bunkov, S.O.Gladkov, *Sov. Phys. JETPh*, **46**, 1141 (1977).
29. Yu.M.Bunkov, T.V.Maksimchuk, *Sov. Phys. JETPh* **52**, 711 (1980).
30. Yu. M. Bunkov, *Uspekhi*, **53**, 843 (2010).
31. E. A. Turov, M. I. Kurkin, V. V. Nikolaev, *Soviet Physics JETP*, **37**, 147 (1973).
32. V. A. Tulin, *Sov. Phys. JETP*, **78**, 149 (1980).
33. M. I. Kurkin, Yu. G. Raidugin, V. N. Sedyskin, A. P. Tankeev, *Sov. Phys. Sol.State*, **32**, 923 (1990).
34. Yu. M. Bunkov, et al., *Sov.Phys.JETPh*, **57**, 193, (1983).
35. M. A. Borich, Yu.M. Bunkov, M.I.Kurkin, A.P. Tankeev, *JETP Lett.*, **105**, 21 (2017).
36. T. Sato, T. Kunimatsu, K.Izumina,; et al. *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 055301 (2008).
37. P. Hunger, Yu.M. Bunkov, E. Collin, H. Godfrin, *J. Low Temp. Phys.*, **158**, 129 (2010).
38. R.R.Gazizulin, Yu.M.Bunkov, V. L. Safonov *JETP Lett.*, **102**, 876 (2015).
39. Yu.M. Bunkov, et al., *JETP Lett.*, **94**, 68 (2011).
40. M. S. Tagirov, et al., *J. Low Temp. Phys.*, **175**, 167 (2014).
41. Yu. M. Bunkov, et al., *JETP Lett.*, **106**, 677 (2017).
42. Yu. M. Bunkov, et al., *JETP. Lett.*, **109**, 43 (2019).