## Особенности связанной ядерно-электронной прецессии в условиях Бозе конденсации магнонов

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

+Российский квантовый центр, 143025 Сколково, Москва, Россия

\*Лаборатория квантовой динамики, Окинавский институт науки и технологий, 904-0495 Танча, Япония

Поступила в редакцию 5 мая 2020 г. После переработки 30 мая 2020 г. Принята к публикации 30 мая 2020 г.

В связи с экспериментальным обнаружением Бозе конденсации магнонов в связанной ядерноэлектронной прецессии в антиферромагнетиках встал вопрос о ее использовании для магнононики и компьютерных вычислений. В частности, привлекают относительно большие времена когерентности в этих системах по сравнению с традиционными образцами железо-иттриевого граната. Однако наблюдаемая Бозе конденсация магнонов противоречит модели Сула и Накамуры и уравнениям Блоха, которые обычно используются в данных системах. В данной статье мы приводим результаты прямого эксперимента в антиферромагнитном MnCO<sub>3</sub>, которые показывают, что модель Сула и Накамуры и уравнения Блоха не описывают адекватно ядерно-электронную прецессию при больших величинах возбуждения.

DOI: 10.31857/S1234567820140062

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]) позволяет 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] дает возможность конструировать спиновый сверхтекучий кубит, аналогично сверхпроводящему кубиту, успешно приме-

Время существования неравновесных магнонов является весьма важным параметром при выборе материала квантовой магноники. Конечно, антиферромагнитный сверхтекучий <sup>3</sup>Не, в котором постоянная затухания Гильберта составляет порядка 10<sup>-8</sup>, является очевидным рекордсменом по времени когерентности магнонов [11, 12]. Время жизни когерентного состояния в нем может достигать 2000 с [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 мкс. Недавно удалось получить долгоживущий сигнал индукции, который, однако, живет не более 3 мкс [14]. В связи с этим следует обратить внимание на системы связанных ЯЭ колебаний в антиферромагнетиках с большим динамическим сдвигом частоты (ДСЧ), таких как MnCO<sub>3</sub>, CsMnF<sub>3</sub> и других. Эти системы обладают как свойствами антиферромагнитных магнонов,

ненному в квантовом компьютере фирмы Googl [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 [9, 10] позволяет передавать информацию между этими системами и осуществлять фазирование их магнонных компонент.

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

так и 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 собственного иона через сверхтонкое взаимодействие. Это взаимодействие передается через систему упорядоченных электронных моментов другим ядрам на большое расстояние r<sub>0</sub> 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 расталкиваются. 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 антиферромагнитного резонанса (АФМР) и высокой частотой ядерного магнитного резонанса (ЯМР) <sup>55</sup>Mn (около 600 МГц) в сверхтонком поле. Энергия взаимодействия между ядерной и электронной ветвями определяется сверхтонким полем ядер, действующим на электроны:

$$H_{hf}^e = A\gamma_{\rm e}m_z = A\gamma_{\rm e}m\cos\beta,\tag{1}$$

где  $\gamma_{\rm e}$  – 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 ДСЧ, когда частота прецессии зависит от угла отклонения ядерной намагниченности [17]:

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

Полный набор уравнений квазиядерной и квазиэлектронной прецессии для антиферромагнетиков с большой величиной ДСЧ, таких как MnCO<sub>3</sub>, RbMnF<sub>3</sub>, CsMnF<sub>3</sub> и т.д. представлен в [18, 19]. В частности, уравнение для сдвига частоты квазиядерной моды колебаний:

$$\omega^n = \omega^{n0} \left( 1 - \frac{H_{\rm E} H_n \cos\beta}{2H(H+H_{\rm D})} \frac{m}{M} \right),\tag{3}$$

где H – внешнее магнитное поле,  $H_{\rm E}$  – обменное поле,  $H_n$  – сверхтонкое поле, действующее на ядра со стороны электронов, и  $H_{\rm D}$  – магнитное поле Дзялошинского, которое равно 4.4 кОэ в MnCO<sub>3</sub> и нулю в CsMnF<sub>3</sub>,  $M \equiv |\mathbf{M}|$  и  $m \equiv |\mathbf{m}|$  – величины электронной и ядерной намагниченности. Применимость данного уравнения для рассматриваемых кристаллов была подтверждена многими экспериментальными результатами [20–24]. 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 [27–29].

В связи с аналогией между уравнениями движения намагниченности в рассматриваемых кристаллах и в антиферромагнитном сверхтекучем <sup>3</sup>Не Буньковым было предсказано существование спиновой сверхтекучести в этих кристаллах [30]. Это предположение вызвало критику оппонентов в связи с тем, что ядерная подсистема находится в парамагнитном состоянии и должна описываться уравнениями Блоха, а не уравнениями Ландау–Лифшица для магнитоупорядоченных систем. Соответственно, возбужденная ядерная спиновая прецессия должна релаксировать с быстрой потерей поперечной ядерной намагниченности  $m \cos \beta$ . В этих системах был обнаружен аналог нелинейного ферромагнитного резонанса, когда частота прецессии следует за частотой үН 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 β, 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 ее намагниченности и температуры ядерной подсистемы. А это значит, что квази-ядерная (КЯ) мода связанных ядерно-электронных (ЯЭ) колебаний описывается уравнениями Ландау–Лифшица и, соответственно, модель Сула–Накамуры (СН) в этом случае не применима.

Эксперименты проводились в Окинавском институте науки и технологий на криостате растворения <sup>3</sup>Не в <sup>4</sup>Не в диапазоне температур 0.5–1 К. При более низких температурах времена установления спиновой температуры резко замедляются и достигают порядка 10<sup>4</sup> с при 0.1 К [34]. Схема спектрометра представлена на рис. 1. Детали установки и методики экс-



Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема гомодинного ЯМР спектрометра, использованного в эксперименте

периментов описаны в [18]. Эксперименты проводились на образце MnCO<sub>3</sub>, выращенном в институте Физических проблем им. П. Л. 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 радиочастотного (РЧ) возбуждения ( $-25 \, \text{дБм}$ ). Результаты показаны на рис. 2. Резонансное поле хорошо соответствует теоретическим 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:

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

где  $H_1$  – амплитуда возбуждающего радиочастотного поля на ядрах, с учетом коэффициента усиления за счет сверхтонкого взаимодействия.

Затем была увеличена мощность РЧ возбуждения до +5 дБм и получены сигналы абсорбции и дисперсии при уменьшении внешнего магнитного поля при тех же температурах. На рисунках 3 и 4 по-

Письма в ЖЭТФ том 112 вып. 1-2 2020



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

казаны записи сигналов абсорбции и полной поперечной намагниченности 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 *А* величина сигнала соответствует равновесным условиям. При



Рис. 3. (Цветной онлайн) Сигнал абсорбции при малом возбуждении (внизу) и при мощности возбуждения +5 дБм при температуре 640 мК (1), 742 мК (2), 877 мК (3) и 1010 мК (4). Пунктиром показана зависимость сигнала от температуры в случае применимости модели СН

сканировании поля вниз сигнал растет до точки В (кривая 1). Однако если сдвиг частоты определяется только изменением температуры и, соответственно, намагниченности ядерной системы, то амплитуда сигнал должен соответствовать точке  $B_1$ , которая получена как резонансный сигнал при данном поле, мощности накачки, и температуре ядерной системы. При дальнейшем сканировании поля мы приходим к точке С. Однако если частота сигнала сдвинулась за счет только нагрева ядерной системы, то он должен соответствовать точке  $C_1$ , т.е. 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 счет уменьшения ядерной намагниченности, а за счет ее 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 счет температуры решетки мала, как следует из температурной зависимости сигналов при малой мощности (рис. 2).

Возникает вопрос, почему ядерная намагниченность остается отклоненной и не термализуется в условиях постоянной накачки РЧ 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,



Рис. 4. (Цветной онлайн) Сигнал поперечной намагниченности при малом возбуждении (внизу) и при мощности возбуждения +5 дБм при температуре 640 мК (1), 742 мК (2), 877 мК (3) и 1010 мК (4). Пунктиром показана зависимость сигнала от температуры в случае применимости модели СН

однако, опускает частоту прецессии и времена жизни связанных магнонов в область низких частот. Эта теория уже нашла свое косвенное подтверждение в [18]. В этой работе было показано, что соотношение величин сигналов абсорбции и дисперсии как функция сдвига магнитного поля ближе к величинам, следующим из уравнений Ландау–Лифшица. Однако отсутствие калибровки величины РЧ поля в этой работе не дало возможности прямой проверки этого утверждения. Варьирование температуры в эксперименте, представленном здесь, позволило непосредственно показать сохранение модуля ядерной намагниченности при ее отклонении от равновесного направления. Таким образом, при сканировании магнитного поля частота системы подстраивается под частоту РЧ накачки за счет отклонения ядерной намагниченности при сохранении ее модуля, как показано на рис. 5 (траектория 2), а не по траектории 1, следующей из теории СН и уравнений Блоха.

Очень важным свойством магнонов ЯЭМР моды является их отталкивание. Действительно, при увеличении числа магнонов при отклонении намагниченности частота прецессии увеличивается. При плотности магнонов выше порога формирования магнонного Бозе конденсата должен образовываться сверхтекучий спиновый домен с однородной прецессией. Формирование такого домена было напрямую продемонстрировано в сверхтекучем <sup>3</sup>He-A [36, 37].

В наших экспериментах эти сигналы должны меняться аналогичным образом. Сигнал адсорбции изменяется в соответствии с этим сценарием, однако



Рис. 5. (Цветной онлайн) Два сценария эволюции намагниченности при сканировании магнитного поля. 1 – Согласно теории СН и релаксацией Блоха. 2 – Согласно уравнениям Ландау–Лифшица при сохранении модуля вектора ядерной намагниченности

сигнал полной поперечной намагниченности оказывается существенно больше. В данном случае мы имеем дело со связанной ЯЭ прецессией. При этом основной сигнал излучается не ядерной подсистемой, а электронной подсистемой из-за ее существенно большей намагниченности. Соотношение между ядерными и электронными сигналами, без учета поля Дзялошинского, имеет вид [31]:

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

$$M_y = \frac{H_n}{H} m_y. \tag{6}$$

Отсюда следует, что сигнал поглощения, пропорциональный  $M_y$ , является сигналом, пропорциональным поперечной компоненте ядерной намагниченности. В сигнале дисперсии, который пропорционален  $M_x$ , появляется дополнительный член из-за внешнего радиочастотного поля. Следовательно, для количественного описания сигналов нам необходимо провести полное теоретическое исследование связанной ЯЭ прецессии намагниченности в РЧ поле. Однако уже представленные результаты показывают, что она не описывается моделью СН и уравнениями Блоха.

Согласно модели СН [15, 16], динамика парамагнитной ядерной подсистемы описывается косвенным взаимодействием через упорядоченную электронную подсистему. При этом ее релаксация описывается уравнениями Блоха, условия которых не позволяют образоваться магнонному Бозе конденсату неравновесных магнонов. Однако экспериментально было показано, что процессы затухания сигнала свободной индукции не описываются неоднородностью внешнего магнитного поля. Был получен так называемый долгоживущий сигнал индукции, характерный для магнонного Бозе конденсата и спиновой сверхтекучести [38]. Кроме того, времена расфазировки этого сигнала в некоторых условиях превышали даже время спин-спиновой релаксации, измеренной методами спинового эха при малом возбуждении. Также было показано, что при достаточной плотности неравновесных магнонов последние демонстрируют свойства спиновой сверхтекучей системы [39], которые были показаны в публикациях [19, 40, 41]. В частности, были обнаружены такие явления, как Голдстоуновские моды колебаний [42] и не резонансное возбуждение [43], свойственные магнонному БЭК.

В целях объяснения этих результатов была проанализирована роль упорядоченной электронной спиновой подсистемы [18, 35]. Было теоретически показано, что основную роль в динамике данной системы играет упорядоченная электронная подсистема, динамика которой описывается уравнениями Ландау–Лифшица. Роль ядерной подсистемы сводится к роли присоединенного маятника, который переносит частоту прецессии в область частот ядерного магнитного резонанса. В нашем исследовании, представленном в данной статье, прямым экспериментом показано, что в условиях непрерывной накачки модуль намагниченности связанной ЯЭ прецессии сохраняется, что свойственно для магнитоупорядоченных систем. Поэтому данная система может образовывать Бозе конденсат неравновесных магнонов при их достаточной плотности. Таким образом, данная магнонная система является кандидатом для изготовления приборов на основе супермагноники и магнонных сверхтекучих кубитов. Весьма интересной является возможность изготовления 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.

 Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nature **464**, 262 (2010).

- A. Khitun, M. Bao, and K. L. Wang, J. Phys. D: Appl. Phys. 43, 264005 (2010).
- D. Lachance-Quirion, Y. Tabuchi, A. Gloppe, K. Usami, and Y. Nakamura, Appl. Phys. Express 12, 070101 (2019).
- B. Rana and Y. Otani, Communications Physics 2, 90 (2019).
- Yu. M. Bunkov and G. E. Volovik, Spin Superfluidity and Magnon BEC (Novel Superfluids), ed. by K. H. Bennemann and J. B. Ketterson, University press, Oxford (2013).
- 6. Yu. M. Bunkov, J. Low Temp. Phys. 183, 399 (2016).
- Yu. M. Bunkov, SPIN 9, 1940005 (2019); DOI: 10.1142/S2010324719400058.
- F. Arute, K. Arya, R. Babbush et al. (Collaboration), Nature 574, 505 (2019).
- J.A. Haigh, A. Nunnenkamp, A.J. Ramsay, and A.J. Ferguson, Phys. Rev. Lett. **117**, 133602 (2016).
- L. V. Abdurakhimov, D. Konstantinov, and Yu. M. Bunkov, Phys. Rev. Lett. **114**, 226402 (2015).
- Yu. M. Bunkov, S. N. Fisher, A. M. Guenault, and G. R. Pickett, Phys. Rev. Lett. 69, 3092 (1992).
- S. Autti, V.B. Eltsov, and G.E. Volovik, Phys. Rev. Lett. **120**, 215301 (2018).
- S. N. Fisher, G. R. Pickett, P. Skyba, and N. Suramlishvili, Phys. Rev. B 86, 024506 (2012).
- Yu. M. Bunkov, P. M. Vetoshko, A. N. Kuzmichev, G. V. Mamin, S. B. Orlinskii, T. R. Safin, V. I. Belotelov, and M. S. Tagirov, JETP Lett. **111**, 62 (2020).
- 15. H. Suhl, Phys. Rev. 109, 606 (1958).
- T. Nakamura, Prog. Theor. Phys. (Kyoto) 20, 542 (1958).
- P.G. De Gennes, P.A. Pincus, F. Hartmann-Boutron, and J. M. Winter, Phys. Rev. **129**, 1105 (1963).
- 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).
- 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).
- G. L. Witt and A. M. Portis, Phys. Rev. 135, 1616 (1964).
- 21. V.A. Tulin, Sov. Phys. JETP 55, 831 (1968).
- L. A. Prozorova and A. I. Smirnov, Sov. Phys. JETP 40, 970 (1975).

- A.S. Borovik-Romanov, Yu.M. Bunkov, and B.S. Dumesh, Physica 86, 1301 (1977).
- A. S. Borovik-Romanov, Yu. M. Bunkov, B. S. Dumesh, M. I. Kurkin, M. P. Petrov, and V. P. Chekmarev, Sov. Phys. Uspekhi 142, 537 (1984).
- Yu. M. Bunkov and B. S. Dumesh, Sov. Phys. JETP 41, 576 (1975).
- Yu. M. Bunkov and V. V. Dmitriev, Sov. Phys. JETP 53, 1237 (1981).
- 27. Yu. M. Bunkov, JETP Lett. 23, 244 (1976).
- Yu. M. Bunkov and S. O. Gladkov, Sov. Phys. JETP 46, 1141 (1977).
- Yu. M. Bunkov and T. V. Maksimchuk, Sov. Phys. JETP 52, 711 (1980).
- 30. Yu. M. Bunkov, Physics-Uspekhi 53, 843 (2010).
- 31. E. A. Turov, M. I. Kurkin, and V. V. Nikolaev, Sov. Phys. JETP 37, 147 (1973).
- 32. V.A. Tulin, Sov. Phys. JETP 78, 149 (1980).
- M. I. Kurkin, Yu.G. Raidugin, V.N. Sedyshkin, and A. P. Tankeev, Sov. Phys. Sol. State **32**, 923 (1990).
- 34. Yu. M. Bunkov, V. V. Dmitriev, B. S. Dumesh, and Yu. M. Mukharskiy, Sov. Phys. JETP 57, 193 (1983).
- 35. M.A. Borich, Yu.M. Bunkov, M.I. Kurkin, and A.P. Tankeev, JETP Lett. **105**, 21 (2017).
- T. Sato, T. Kunimatsu, K. Izumina, A. Matsubara, M. Kubota, T. Mizusaki, and Yu. M. Bunkov, Phys. Rev. Lett. **101**, 055301 (2008).
- 37. P. Hunger, Yu. M. Bunkov, E. Collin, and H. Godfrin, J. Low Temp. Phys. **158**, 129 (2010).
- E. M. Alakshin, Yu. M. Bunkov, R. R. Gazizulin, L. I. Isaenko, A. V. Klochkov, T. R. Safin, K. R. Safiullin, M. S. Tagirov, and S. A. Zhurkov, J. Phys. Conf. Ser. 568, 042001 (2014).
- R. R. Gazizulin, Yu. M. Bunkov, and V. L. Safonov, JETP Lett. **102**, 876 (2015).
- 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).
- M. S. Tagirov, E. M. Alakshin, Yu. M. Bunkov, R. R. Gazizulin, S. A. Zhurkov, L. I. Isaenko, A. V. Klochkov, A. M. Sabitova, T. R. Safin, and K. R. Safiullin, J. Low Temp. Phys. **175**, 167 (2014).
- Yu. M. Bunkov, A. V. Klochkov, T. R. Safin, K. R. Safiullin, and M. S. Tagirov, JETP Lett. 106, 677 (2017).
- Yu. M. Bunkov, A. V. Klochkov, T. R. Safin, K. R. Safiullin, and M. S. Tagirov, JETP Lett. 109, 43 (2019).