

УДК 538.11

© 1990

**ОСОБЕННОСТИ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА,  
СВЯЗАННОГО С НАСЫЩЕНИЕМ ЯМР,  
В НЕЛИНЕЙНОЙ СИСТЕМЕ ЯДЕРНЫХ СПИНОВ**

*М. И. Куркин, Ю. Г. Райдугин, В. Н. Седышкин, А. П. Танкеев*

Получено выражение для пороговой амплитуды переменного поля при поперечной накачке ядерных спиновых волн в легкоплоскостных антиферромагнетиках. Поперечная накачка рассматривается как механизм фазового перехода первого рода в неравновесной системе ядерных спинов, что определяет специфическую роль неоднородностей в этом процессе.

В настоящее время для изучения релаксации электронных и ядерных спиновых волн широко используется метод параллельной накачки [1, 2]. Этот метод позволяет измерить времена релаксации поперечных колебаний электронных и ядерных намагниченостей подрешеток. В [3] было показано, что для изучения релаксации продольных компонент этих намагниченостей (по крайней мере ядерных) можно использовать метод поперечной накачки. Указанный вывод был продемонстрирован на очень простом примере, который не соответствует условиям реальных экспериментов [4, 5]. По этой причине формула для пороговой амплитуды поля накачки  $H_{1c}$ , полученная в [3], нуждается в уточнении. Результаты соответствующего расчета приведены в разделе 1.

В разделе 2 обсуждаются возможности сравнения выводов теории с экспериментом. Поскольку имеющихся данных оказалось недостаточно для такого сравнения, обсуждаются варианты постановки новых экспериментов.

#### 1. Уточненная формула для пороговой амплитуды поля накачки

Поперечная накачка или параметрическое возбуждение спинов в поперечном радиочастотном (РЧ) поле

$$h(t) = 2H_1 \cos \omega t \quad (1)$$

возникает, когда их малоамплитудные колебания становятся неустойчивыми [3–5]. Одна из особенностей рассмотренного в [3] механизма потери устойчивости этого состояния заключается в том, что соответствующее пороговое значение амплитуды поля накачки  $H_{1c}$  определяется скоростью спин-решеточной релаксации  $1/T_1$ , которая обычно связана с наиболее слабыми взаимодействиями в системе. В случае ядерных спинов соответствующий параметр малости можно определить как отношение доли ширины линии ЯМР, обусловленной  $T_1$ , к частоте ЯМР  $\omega_n$ . При обычных значениях  $T_1 = 10^{-3}$  с и  $\omega_n = 10^9$  с<sup>-1</sup> его величина оказывается порядка

$$1 (\omega_n T_1)^{-1} = 10^{-6}. \quad (2)$$

Таким образом, при вычислении  $H_{1c}$  приходится учитывать достаточно слабые эффекты с параметрами малости вплоть до  $10^{-6}$ . К ним относятся:

выход электронных намагниченостей подрешеток из базисной плоскости кристалла; наличие высших гармоник в колебаниях ядерных спинов по частоте  $\omega$ ; обычный механизм поперечной накачки, порог которого определяется временем поперечной релаксации; наличие сверхтонкой щели в спектре АФМР; эллиптичность прецессии ядерных спинов; эффекты, влияющие на форму релаксационных слагаемых в уравнениях движения для намагниченостей ядерных подрешеток. Из перечисленных эффектов существенными оказались только последние три, на которых мы остановимся более подробно.

В [3] релаксационные слагаемые записывались в форме Блоха в системе координат  $(x, y, z)$ , связанной с равновесной ориентацией вектора  $m$  при  $h(t)=0$ . Здесь мы рассмотрим случай, когда уравнения Блоха записываются в системе координат  $(x_\omega, y_\omega, z_\omega)$ , движущейся вместе с  $m$  в поле  $h(t)$ . Тогда после возвращения в систему координат  $(x, y, z)$  уравнения для  $m$  принимают вид

$$\begin{aligned}\delta\dot{m}_k^x(t) &= \omega_n \delta m_k^y(t) - \frac{\delta m_k^x(t)}{T_{2k}} + \frac{m_0^x(t)}{m_0} \frac{\delta m_k^x(t)}{T'_{2k}}, \\ \delta\dot{m}_k^y(t) &= -(\omega_n - \omega_p(k)) \left[ \delta m_k^x(t) - \frac{M_0^x(t)}{M_0} \delta m_k^x(t) \right] - \\ &\quad - \frac{\delta m_k^y(t)}{T_{2k}} + \frac{m_0^y(t)}{m_0} - \frac{\delta m_k^y(t)}{T'_{2k}}, \\ \delta\dot{m}_k^z(t) &= -\omega_n \left[ \frac{M_0^x(t)}{M_0} \delta m_k^y(t) + \frac{\omega_p(k)}{\omega_n} \frac{m_0^y(t)}{m_0} \delta m_k^x(t) \right] - \\ &\quad - \frac{1}{T'_{2k}} \left[ \frac{m_0^x(t)}{m_0} \delta m_k^x(t) + \frac{m_0^y(t)}{m_0} \delta m_k^y(t) \right] - \frac{\delta m_k^z(t)}{T_{1k}},\end{aligned}\quad (3)$$

где

$$m_k^\alpha(t) = \int d\mathbf{r} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} m^\alpha(\mathbf{r}, t), \quad \alpha = x, y, z; \quad \delta m_k^\alpha(t) = (m_k^\alpha(t) - m_0^\alpha(t))/m_0 \quad (4)$$

— отклонения  $m^\alpha$  от их значений  $m_0^\alpha(t)$  в переменном поле  $h(t)$  (связь величин  $m^\alpha$  с компонентами намагниченостей подрешеток  $m_1$  и  $m_2$  приведена в [6]),

$$m_0^x(t) = m_0 \frac{(\tilde{\omega}_n^2 - \omega^2) \omega_n \omega_1(t)}{[(\tilde{\omega}_n^2 - \omega^2)^2 + (2\omega/T_{20})^2]}, \quad m_0^y(t) = \frac{\dot{m}_0^x(t)}{\omega_n}, \quad (5)$$

$$\omega_1(t) = \gamma_n \eta h(t), \quad \eta = (H + H_b) H_n / H_E^2, \quad (6)$$

$H_b$  — поле Дзялошинского;  $H$  — постоянное поле, приложенное в «легкой» плоскости антиферромагнетика;  $H_n = AM_0$  — сверхтонкое поле на ядре;  $\omega_n = \gamma_n H_n$  — несмешенная частота ЯМР,

$$H_E^2 = H(H + H_b) + H_\Delta^2, \quad H_\Delta^2 = Am_0^2 H_E, \quad (7)$$

$Am_0$  — сверхтонкое поле на электронах,  $H_E$  — обменное поле,

$$\omega_p(k) = \omega_n \frac{H_\Delta^2}{H_e^2 + H_E^2 (ak)^2} \quad (8)$$

— динамический сдвиг частоты для ядерной спиновой волны с волновым вектором  $k$ ;  $a$  — среднее межатомное расстояние в кристалле,

$$\tilde{\omega}_n = \sqrt{\omega_n (\omega_n - \omega_p(0))} \quad (9)$$

— частота однородных колебаний  $m$ ,

$$M_0^x(t) = M_0 \frac{\omega_n^2 - \omega^2}{\omega_n^2} \frac{m_0^x(t)}{m_0} \quad (10)$$

— компонента электронной намагниченности одной подрешетки в поле  $h(t)$ ;  $T_{1k}$  и  $T_{2k}$  — времена продольной и поперечной релаксации  $\delta m_k^z$ ,

$$1/T'_{2k} = 1/T_{2k} - 1/T_{1k}. \quad (11)$$

Отметим, что коэффициент усиления  $\eta$  (6) при  $H \rightarrow 0$  не обращается в бесконечность (как обычно считалось [3, 7]), а стремится к конечному пределу  $\eta_{\max} = H_n H_D / H_A^2$ . Это связано с последовательным учетом сверхтонкой щели в магнитном спектре на всех этапах вычислений. По этой же причине  $M_0^x$  (10) отличается от обычного выражения для легкоплоскостного антиферромагнетика  $M_0^x = M_0 h(t)/H_n$  [7] и переходит в него лишь в пределе  $\omega_p(0)/\omega_n = 0$ .

Формула для пороговой амплитуды РЧ поля  $H_{1c}$ , как и в [3], получается из условия появления инкремента нарастания амплитуды колебаний  $\delta m_k^a(t)$

$$H_{1c}^2 = \frac{1}{T_{1k}} \frac{T_{20}}{T_{2k}} \frac{\omega_n^3}{(\omega_n^2 - \omega^2)} \frac{(\tilde{\omega}_n^2 - \omega^2)^2 + 2(2\omega/T_{20})^2}{\gamma_n^2 \gamma^2 \omega_n^4}, \quad (12)$$

где волновой вектор  $k$  (от которого в (12) зависят  $T_{1k}$  и  $T_{2k}$ ) определяется из условий

$$\tilde{\omega}_n^2(k) = \omega_n(\omega_n - \omega_p(k)) \approx \omega^2 > \tilde{\omega}_n^2(0) = \tilde{\omega}_p^2. \quad (13)$$

Приближенное равенство в (13) выполняется с точностью до затухания ядерной спиновой волны  $1/T_{2k}$  [3]. От соответствующей формулы в [3] (формула (24)) выражение (12) отличается заменой множителя  $T_{20}/(T_{20} + T_{2k})$  на  $T_{20}/T_{2k}$  и явным видом  $\tilde{\omega}_n$  (9),  $\eta$  (6).

## 2. Влияние неоднородностей образца

Формулы (5) описывают малоамплитудные колебания  $m$  под действием поля  $h(t)$  (1), которые соответствуют одному из стационарных решений уравнений (3) работы [3] (ненасыщенное состояние). При  $H_1 > H_{1c}$  (12) ненасыщенное состояние становится неустойчивым и система ядерных спинов переходит в другое, так называемое насыщенное состояние [8], характеризуемое гораздо большей амплитудой колебаний  $m$  [8]. Таким образом, переход из ненасыщенного состояния в насыщенное является фазовым переходом первого рода, причем в неравновесной системе, поскольку он происходит в присутствии переменного поля. Однако сейчас нас будет интересовать другая особенность данного фазового перехода, а именно то, что он происходит путем образования зародышей насыщенного состояния, которые возникают в тех местах образца, где величина  $H_{1c}$  оказывается минимальной. Это обстоятельство является важным по двум причинам. Во-первых, измеряемая величина пороговой амплитуды  $H_{1c}$  оказывается характеристикой не всего образца, а лишь небольшой его части. Во-вторых, в зависимости от внешних условий зародыш ненасыщенного состояния может появляться в различных точках образца  $r$ . Тогда, изучая зависимость  $H_{1c}$  от какого-нибудь внешнего параметра, например магнитного поля  $H$ , мы будем измерять зависимость  $H_{1c}(r, H)$  вдоль некоторой линии на плоскости параметров  $r$  и  $H$ , где значение  $H_{1c}$  минимально.

Указанные особенности перехода из ненасыщенного состояния в насыщенное создают определенные трудности при сравнении экспериментальных результатов с выводами теории. Мы обсудим их на примере зависимости порога  $H_{1c}$  от магнитного поля, которая изучалась экспериментально в [4, 5].

### 3. Зависимость пороговой амплитуды поля от поперечной накачки от постоянного магнитного поля

В формуле (12) от поля  $H$  зависит прежде всего множитель

$$f(H) = [(\tilde{\omega}_n^2 - \omega^2)^2 + 2(2\omega/T_{20})^2]/\eta^2\omega_n^4, \quad (1)$$

благодаря частоте ЯМР  $\tilde{\omega}_n$  (8), (9) и коэффициенту усиления  $\eta$  (6). Кроме того, от  $H$  в (12) зависят величины  $T_{20}$ ,  $T_{2k}$  и  $T_{1k}$ . Эти зависимости несомненно нужно будет учитывать, когда дело дойдет до количественного сравнения теории с экспериментом. Однако для тех особенностей кривь  $H_{1c}(H)$ , о которых речь пойдет ниже, наиболее важным является множитель  $f(H)$  (14).

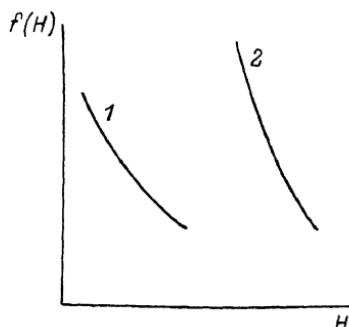


Рис. 1. Качественный вид функции  $f(H)$  при  $H_D > 0$  (1) и  $H_D = 0$  (2).

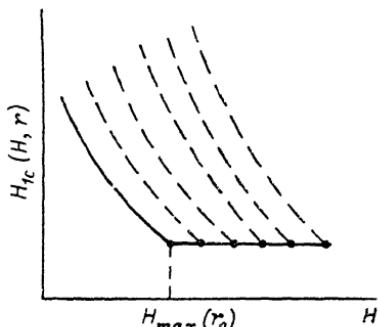


Рис. 2. Возможные зависимости  $H_{1c}(H, r)$  от  $H$  при разных  $r$  в условия неоднородности поля  $H_D$  (штриховые линии) и наблюдаемая зависимость  $H_{1c}$  от  $H$  (сплошная линия).

Явный вид  $f(H)$  получается после подстановки (6)–(9) в (14). При  $|\tilde{\omega}_n^2 - \omega^2| \gg 2\omega/T_{2k}$  это дает

$$f(H) = \frac{1}{H_n^2} \left[ \frac{H_\Delta^2}{H + H_D} \frac{\omega^2}{\omega_n^2} - \frac{\omega_n^2 - \omega^2}{\omega_n^2} H \right]^2. \quad (15)$$

Такая зависимость сохраняется до полей  $H \approx H_{\max}$ , где максимальное значение поля  $H_{\max}$  определяется из условия  $\tilde{\omega}_n^2(H_{\max}) = \omega^2$ . С учетом (8), (9) для  $H_{\max}$  получаем соотношение

$$H_{\max}(H_{\max} + H_D) = \frac{\omega^2}{\omega_n^2 - \omega^2} H_\Delta^2. \quad (16)$$

При  $H = H_{\max}$  величины  $f(H)$  и  $H_{1c}$  достигают своих наименьших значений

$$\begin{aligned} f(H_{\max}) &= \frac{8}{T_{20}^2 \omega^2} \left( \frac{H_{\max}}{H_n} \right)^2, \quad H_{1c}^2(H_{\max}) = \\ &= H_n^2 \frac{T_{20}}{T_{2k}} \frac{\omega_n}{\omega^2 - \omega_n^2} f(H_{\max}). \end{aligned} \quad (17)$$

Качественный вид  $H_{1c}(H) \sim f(H)$  при двух значениях  $H_D$  и одинаковых значениях других параметров приведен на рис. 1. Чтобы полученную зависимость  $H_{1c}$  от  $H$  можно было сравнивать с экспериментом, нужно учесть еще влияние неоднородностей. Как следует из рис. 1, основными характеристиками кривой  $f(H)$  являются наклон, определяемый производной

$$f'(H) = -\frac{H_\Delta^2}{(H + H_D)^2} \frac{\omega^2}{\omega_n^2} - \frac{\omega_n^2 - \omega^2}{\omega_n^2}, \quad (18)$$

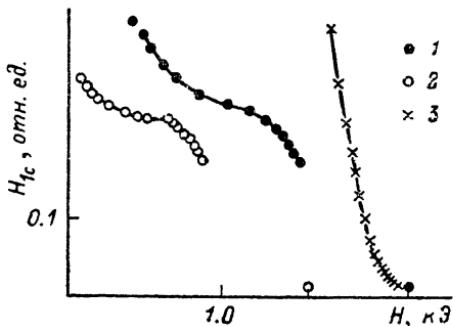
и значение максимального поля  $H_{\max}$  (16). Таким образом, нам достаточно учесть влияние неоднородностей только на эти характеристики.

Из (16), (18) видно, что неоднородности  $H_{\max}$  и  $f'(H)$  определяются неоднородностями  $\omega_n = \gamma_n A M_0$ ,  $H_\Delta = \sqrt{A m_0 H_E}$  и  $H_D$ . Неоднородности  $\omega_n$  можно оценить по неоднородному уширению  $\delta\omega_n = 1$  МГц. Поскольку  $\omega_n = 600$  МГц, то отношение  $\delta\omega_n/\omega_n = 0.002$ . Неоднородность  $H_\Delta$ , по-видимому, такого же порядка, поскольку обменное взаимодействие, как и сверхтонкое, является короткодействующим. Более существенными должны быть неоднородности поля Дзялошинского  $H_D$  и анизотропии в базисной плоскости кристалла  $H'_{\perp}$ . Неоднородности  $H'_{\perp}$  можно учесть, записав поле  $H_e$  (7) в виде

$$H_e^2 = H(H + H_d) + H_\Delta^2 \pm H'_A H_E,$$

где знаку «+» соответствует ориентация  $H'_{\perp} \parallel H$ , а знаку «-» ориентация  $H'_{\perp} \perp H$ . Хотя неоднородности  $H'_{\perp}$  более существенны, поскольку  $H'$  умножается на большое обменное поле  $H_E$ , качественно их влияние оказывается таким же, как и неоднородностей  $H_D$ . Из (16), (18) видно, что характеристики  $H_{\max}$  и  $f'$  убывают с ростом  $H_D$ ; следовательно, семейство кривых  $f(H)$ , соответствующих различным областям неоднородного образца, должно иметь вид (рис. 2). Таким образом, экспериментально наб-

Рис. 3. Зависимость критической амплитуды РЧ поля  $H_{1c}$  (в отн. ед.), при которой происходит переход системы спинов в насыщенное состояние, от магнитного поля при  $T = 2.64$  (1) и  $4.2$  К (2) для  $\text{MnCO}_3$  и  $T = 1.27$  К (3) для  $\text{CsMnF}_3$ .



людаемая зависимость  $H_{1c}$  от  $H$  будет иметь существенно разный вид в зависимости от того, возникает ли зародыш новой фазы при различных  $H$  в одной точке или в разных точках образца. Если при всех  $H$  он возникает в одной точке, то экспериментальную зависимость  $H_{1c}$  от  $H$  можно описывать формулой (12). По-видимому, такой случай наблюдался в [5] на  $\text{CsMnF}_3$  (рис. 3).

Если же этот зародыш возникает в разных точках, то наблюдаемая зависимость  $H_{1c}$  от  $H$  будет определяться огибающей семейства кривых  $f(H)$  (сплошная линия на рис. 2). Ход этой огибающей может оказаться гораздо сложней, чем показано на рис. 2, поскольку на нее накладываются неоднородности времен релаксации  $T_{20}$ ,  $T_{2k}$ ,  $T_{1k}$ . По-видимому, такой случай наблюдался в [5] на  $\text{MnCO}_3$  (рис. 3).

Таким образом, для теоретического описания наблюдаемого поведения  $H_{1c}$  от  $H$  необходимо иметь полную информацию о неоднородностях, существующих в образце. Поскольку получить такую информацию, по-видимому, нереально, приходится искать другие способы сравнения теории с экспериментом. Один из них состоит в том, чтобы снимать зависимость  $H_{1c}$  от  $H$  при нескольких значениях частоты накачки  $\omega$ . Поскольку теория позволяет найти частотные зависимости основных параметров кривой  $H_{10}(H)$  ( $H_{\max}$  и  $H_{10}(H_{\max})$ ), то по зависимости  $H_{10}$  от  $H$  при одном значении  $\omega$  можно предсказать вид кривых  $H_{10}(H)$  при других  $\omega$ .

Другая возможность связана с измерениями  $H_{1c}(H)$  при разных температурах  $T$ . Эта зависимость менее предпочтительна, чем измерения при разных  $\omega$ , поскольку температурная зависимость  $H_{1c}(H_{\max})$  (17) определяется четырьмя параметрами:  $H_\Delta(T)$ ,  $T_{20}(T)$ ,  $T_{2k}(T)$ ,  $T_{1k}(T)$ . Если учесть только температурную зависимость  $H_\Delta(T) \sim 1/\sqrt{T}$ , то кривая  $H_{1c}(H)$  с понижением  $T$  должна смещаться вправо и вверх, что качественно согласуется с экспериментом (рис. 3). Для количественного сравнения необходимо знать температурные зависимости  $T_{20}(T)$ ,  $T_{2k}(T)$  и  $T_{1k}(T)$  и иметь данные для  $H_{1c}(H)$  при нескольких температурах.

## Список литературы

- [1] Львов В. С. Нелинейные спиновые волны. М.: Наука, 1987. 270 с.
- [2] Андриенко А. В., Ожогин В. И., Сафонов В. А., Якубовский А. Ю. // Препринт ИАЭ-4628/9. М., 1988. 48 с.
- [3] Куркин М. И., Райдугин Ю. Г., Танкеев А. П. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 2. С. 503—508.
- [4] Тулин В. А. // ЖЭТФ. 1968. Т. 55. № 3. С. 831—845.
- [5] Тулин В. А. // ЖЭТФ. 1980. Т. 78. № 1. С. 149—156.
- [6] Туров Е. А., Куркин М. И., Николаев В. В. // ЖЭТФ. 1973. Т. 64. № 1. С. 283—296.
- [7] Туров Е. А., Петров М. П. Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках. М.: Наука, 1969. 260 с.
- [8] Куркин М. И. // Письма в ЖЭТФ. 1978. Т. 28. № 11. С. 675—678.

Институт физики металлов  
УрО АН СССР  
Свердловск

Поступило в Редакцию  
22 ноября 1988 г.  
В окончательной редакции  
13 апреля 1989 г.

---