

УДК 537.622

АВТОКОЛЕБАНИЯ В СИСТЕМЕ СМЕШАННЫХ МОД ЯМР
И КОЛЛЕКТИВНЫХ КОЛЕБАНИЙ
ПАРАМЕТРИЧЕСКИХ МАГНОНОВ
В АНТИФЕРРОМАГНЕТИКЕ

B. Л. Сафонов

Показана возможность развития автоколебаний при взаимодействии параметрически возбуждаемых спиновых волн с подрешеткой ядерных спинов, имеющих низкую частоту ЯМР. Рассчитан порог неустойчивости и проведено численное моделирование формы осцилляций поглощаемой СВЧ мощности.

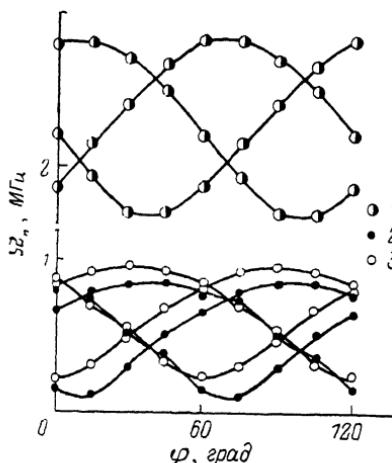
В ряде экспериментов (см. [1-4]) по параметрическому возбуждению спиновых волн (СВ) в антиферромагнетиках при достижении некоторых надкритичностей были обнаружены разнообразные автоколебания поглощаемой образцом СВЧ мощности. Механизмы возникновения этих автоколебаний в большинстве случаев неясны. В теоретических работах [5-7] рассматривались разные модели автоколебательных неустойчивостей системы СВ. Одна из этих моделей, предложенная Черепановым [7], позволяет дать удовлетворительную интерпретацию классу осцилляций параметрической системы, который сопровождается упругими колебаниями собственной моды образца [3, 4]. Проведенное на основе модели [7] исследование [8] модуляционного отклика системы параметрических магнонов на РЧ поле привело к удовлетворительному согласию теории и эксперимента.

В настоящей работе рассматривается идеально близкая к модели [7] возможность развития автоколебаний СВ при учете резонансного взаимодействия коллективных колебаний параметрической системы с подрешеткой двухуровневых систем, например ядерных спинов с невысокой частотой ЯМР. В основе автоколебательной неустойчивости здесь, как и в работе [7], заложен принцип генератора с положительной обратной связью. Специфика рассматриваемой модели главным образом проявляется за порогом возникновения автоколебаний и состоит в том, что форма осцилляций благодаря процессу насыщения ЯМР будет далекой от гармонической. Мы полагаем, что изучение магнитного резонанса ядер с частотами, сравнимыми с частотой коллективных колебаний параметрических магнонов, может стать предметом целенаправленного экспериментального исследования.¹

1. Низкую (порядка нескольких мегагерц) частоту ЯМР в небольших магнитных полях (~ 1 кЭ) можно ожидать для ядерных спинов атомов, имеющих достаточно высокую локальную симметрию, чтобы наведенные поля (дипольное, квадрупольное и поле спиновой плотности) от магнитных подрешеток антиферромагнетика были в достаточной степени скомпенсированы. Примером тому могут служить ядра ^{133}Cs ($I=7/2$) и ^{18}F .

¹ Ранее в работе [9] была развита теория порогового (кинетического) разогрева системы ядерных спинов параметрическими СВ. Возможность возникновения осцилляций в этом случае не обсуждалась.

($I=1/2$) в кристалле CsMnF_3 в позициях Cs_1 , Cs_2 и F_1 (обозначения и описание структуры см. в [10]). Мы провели расчет на ЭВМ частот ЯМР от наведенных дипольных полей (поля направлены по главной оси кристалла) в однодоменном приближении в нулевом внешнем поле. Результаты изображены на рис. 1. Видно, что частоты ЯМР невелики — для сравнения частота ЯМР фтора, расположенного в низкосимметричной позиции F_2 , лежит в пределах ~ 50 МГц. Аналогичный расчет можно провести и для ненулевых магнитных внешних полей при условии известных параметров спиновой плотности на ядрах. По оценкам, в поле $H \approx 1.5$ кЭ (типичном для экспериментов [1, 4]) частоты ЯМР лежат в пределах $\Omega_n \leq 6$ МГц для F_1 и $\Omega_n \leq 2$ МГц для $\text{Cs}_{1,2}$.



2. Перейдем к непосредственному изучению рассматриваемой модели. Ее математическая формулировка в значительной степени облегчена тем обстоятельством, что параметрические магноны имеют сферически-симметричное угловое распределение из-за пренебрежимо малого влияния

Рис. 1. Частоты ЯМР $^{19}\text{F}_1$ (1), $^{133}\text{Cs}_1$ (2) и $^{133}\text{Cs}_2$ (3) в кристалле CsMnF_3 в нулевом внешнем магнитном поле.

Угол φ обозначает отклонение антиферромагнитного момента от оси второго порядка в базисной плоскости кристалла. Сплошные линии проведены для наглядности через расчетные точки.

диполь-дипольного взаимодействия в антиферромагнетиках. Используя метод Лэкса [11], из редуцированного гамильтонiana СВ, взаимодействующих с ядерными спинами матрицы, можно получить следующие уравнения ($\hbar=1$):

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \frac{d}{dt} \theta + h V_k \sin \theta &= \frac{\omega_p}{2} - \tilde{\omega}_k - S N, \\ \frac{1}{2} \frac{d}{dt} N &= N [h V_k \cos \theta - \gamma(N)], \\ \frac{d}{dt} b + \left(i \Omega_n + \frac{1}{T_2} \right) b &= -2i \Psi \langle I \rangle^{1/2} N, \\ \frac{d}{dt} \langle I \rangle &= -\frac{1}{T_1} (\langle I \rangle - \langle I \rangle_0 + b^* b), \\ \tilde{\omega}_k &\equiv \omega_k + 2TN + \Psi \langle I \rangle^{1/2} (b + b^*). \end{aligned} \quad (1)$$

Первые два уравнения представляют собой систему S -теории [12], в которой N — число параметрических магнонов на ячейку; θ — угол расфазировки возбужденных (с частотой ω_p) колебаний среды относительно поля накачки с амплитудой h ; V_k — коэффициент связи магнонов с переменным магнитным полем; T , S — амплитуды четырехмагнитного взаимодействия; $\gamma(N) = \gamma_0 + \eta N$ — скорость релаксации СВ. Третье уравнение в (1) (и ему комплексно-сопряженное) описывает эволюцию поперечных колебаний ядерных спинов (T_2 — время спин-спиновой релаксации), а четвертое уравнение — ядерную спин-решеточную релаксацию (со временем T_1). Амплитуда $\Psi \langle I \rangle^{1/2}$ характеризует связь СВ с ядерными спинами, имеющими среднюю поляризацию $\langle I \rangle$, которая может отличаться от равновесной (в отсутствие поля накачки) поляризации $\langle I \rangle_0$.

Исследование динамики системы, задаваемой уравнениями (1), разобъем на два этапа. Первый включает в себя анализ стационарного (до

порога автоколебаний) состояния. Полагая производные по времени равными нулю, получаем²

$$\begin{aligned} N_0 &= (\gamma_0 / |S|) \{ [(h/h_c)^2 (1+x^2) - 1]^{1/2} - x \} / (1+x^2), \\ \sin \theta_0 &= -SN_0/hV_k, \quad x \equiv \eta / |S|, \\ b_0 &= -2i\Psi \langle I \rangle^{1/2} N_0 / (i\Omega_n + 1/T_2), \\ \langle I \rangle &= \langle I \rangle_0 - |b_0|^2. \end{aligned} \quad (2)$$

Соотношения для N_0 и θ_0 представляют собой обычные для S -теории зависимости от надкритичности h/h_c для параметрических магнонов с нелинейным затуханием ($h_c \equiv \gamma_0 / V_k$).

Приближение спиновых отклонений, примененное для ядерных спинов в (1), требует выполнения условия $|b_0|^2 \ll \langle I \rangle_0$, которое, согласно (2), сводится к $\Psi N_0 \ll \Omega_n / 2$. Полагая $\Omega_n \sim 2$ МГц и (типовы для эксперимента [1]) величины $|S| \sim 100$ ГГц, $\gamma_0 \sim 0.1$ МГц, $h/h_c \sim 3$, получаем $\Psi \ll 10^5$ МГц. Для амплитуды Ψ , имеющей дипольную природу, оценка дает $\Psi \leq 10^4$ МГц.

Анализ на устойчивость стационарного состояния (2) по отношению к малым отклонениям δN , $\delta \theta$, δb , $\delta \langle I \rangle \sim \exp(\lambda t)$ в системе (1) приводит к следующему характеристическому уравнению:

$$E_1(\lambda) (\lambda + 1/T_1) + \xi E_2(\lambda) (\lambda + 1/T_2 + T_2 \Omega_n^2) = 0, \quad (3)$$

где

$$\begin{aligned} E_1(\lambda) &= \varepsilon_1(\lambda) [(\lambda + 1/T_2)^2 + \Omega_n^2] - \varepsilon_2, \\ E_2(\lambda) &= \varepsilon_1(\lambda) (\Omega_n^2 + T_2^{-2}) + \varepsilon_2, \\ \xi &= (T_2/T_1) (2\Psi N_0)^2 / (\Omega_n^2 + T_2^{-2}) [1 + (\Omega_n T_2)^2], \\ \varepsilon_1(\lambda) &\equiv (\lambda + 2\gamma) (\lambda + 2\eta N_0) + \Omega_0^2, \\ \varepsilon_2 &\equiv 16SN_0^2\Psi^2 \langle I \rangle \Omega_n, \quad \Omega_0^2 \equiv 4S(2T + S)N_0^2. \end{aligned}$$

Как обычно, стационарное состояние устойчиво, если действительные части всех корней λ отрицательны. Потеря устойчивости происходит при условии $\operatorname{Re}(\lambda) = 0$ хотя бы для одного характеристического числа. Поскольку уравнение (3) является уравнением пятой степени относительно λ , то его можно исследовать лишь численно при заданных значениях параметров.

Если в (3) пренебречь вторым слагаемым ($\xi \ll 1$), то характеристическое уравнение сводится к виду

$$E_1(\lambda) = 0, \quad (4)$$

адекватному характеристическому уравнению модели [7], обобщенной на случай нелинейного затухания магнонов. Необходимым условием существования автоколебательной неустойчивости в этом приближении является неравенство $S < 0$. Расчет частоты автоколебаний на пороге неустойчивости дает

$$\omega_a = \{[(\Omega_n^2 + T_2^{-2}) \gamma T_2 + \Omega_0^2] / (1 + \gamma T_2)\}^{1/2}, \quad (5)$$

где Ω_0 — частота коллективных колебаний параметрических СВ. В пренебрежении нелинейным затуханием магнонов можно определить область частот $\Omega_- \leq \Omega_0 \leq \Omega_+$, в которой $\operatorname{Re}(\lambda) \geq 0$

$$\Omega_{\pm}^2 = \Omega_n^2 - 2\gamma_0/T_2 - T_2^{-2} + 2\xi(\gamma_0 + 1/T_2)^2 \pm 2(\gamma_0 + 1/T_2)\Omega_n W^{1/2}, \quad (6)$$

² Здесь и далее мы ограничимся изучением состояний только на резонансной поверхности $\tilde{\omega}_k = \omega_p/2$, уравнение которой следует из анализа на внешнюю устойчивость первых двух уравнений в (1). Поскольку специфика взаимодействия СВ с ядерными спинами там содержится лишь в структуре $\tilde{\omega}_k$, то этот анализ полностью аналогичен проводимому в S -теории [12].

$$W \equiv [1 - (2\gamma_0 + 1/T_2)/T_2\Omega_n^2] \zeta + [\zeta(\gamma_0 + 1/T_2)/\Omega_n]^2 - 1,$$

$$\zeta \equiv \langle I \rangle \Omega_n T_2 \Psi^2 / \gamma_0 |S| (2T/S + 1).$$

Как нетрудно видеть из (6), автоколебательная неустойчивость существует при условии $W \geq 0$. Начало и конец неустойчивости определяются границами интервала $\Omega_0(N_0) \in [\Omega_-, \Omega_+]$.

Следует отметить, что метод модуляционного отклика параметрической системы, использованный в работе [8] в окрестности порога упругих автоколебаний образца, в полной мере применим и в случае рассматриваемой «коллективно-ядерной» неустойчивости. Это означает, что в окрестности частоты ω_a должен наблюдаться эффект усиления слабых сигналов — общее явление, свойственное динамическим системам вблизи бифуркаций [13]. Возможно, такой способ возбуждения ЯМР с частотами, лежащими в области частот коллективных колебаний параметрических магнитонов, позволит регистрировать сигналы ядер малой концентрации.

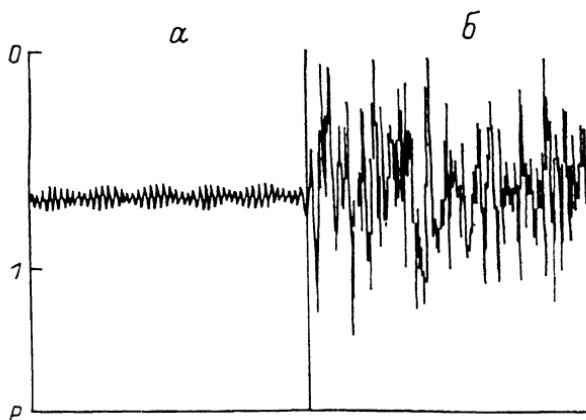


Рис. 2. Фрагменты осцилляций поглощаемой СВЧ мощности $P=N \cos \theta$ за временный интервал 0.39 мс при надкритичностях $h/h_c=3.1$ (a) и 3.3 (b).

Моделирование проводилось при условии $\omega_k + 2TN = \omega_p/2$.

3. Второй этап исследования системы (1) состоит в изучении ее динамики за порогом возбуждения автоколебаний. Поскольку аналитическое решение нелинейных уравнений вида (1) не представляется возможным, мы ограничимся численным анализом. Для определенности параметры задачи выберем близкими к условиям эксперимента [1]: $S=T=-10^5$ МГц, $\Psi=3 \cdot 10^3$ МГц, $\eta=0$, $\gamma_0=0.2$ МГц, $\Omega_n=2$ МГц, $\langle I \rangle_0=4 \cdot 10^{-4}$ (переводной множитель 2π для простоты мы везде опускаем). Из (6) нетрудно убедиться, что автоколебательная неустойчивость будет существовать, если $1/T_2 \leq 0.1$ МГц, т. е. при добротности ЯМР $\Omega_n T_2 \geq 20$. Чем выше эта добротность, тем шире область надкритичностей, в которой имеются осцилляции. Возьмем, к примеру, $1/T_2=1/T_1=10$ кГц, тогда автоколебания начинаются при $h/h_c \approx 3$. Первоначально малые гармонические автоколебания с частотой ω_a с ростом надкритичности сильно искажают свою форму (рис. 2). В системе происходит переход к хаотическим автоколебаниям по сценарию Фейгенбаума через каскад бифуркаций удвоения периода. Амплитуда автоколебаний стабилизируется на определенном уровне благодаря снижению средней поляризации ядерных спинов.

Детальное изучение хаотических режимов системы (1) представляет собой достаточно сложную задачу для моделирования, поскольку в уравнениях содержится несколько характерных временных масштабов (Ω_n^{-1} , Ω_n^{-1} , T_2 , T_1), сильно (на несколько порядков) разнесенных по шкале времени (подчеркнем, что экспериментальные значения T_2 и T_1 нам неизвестны). По этой причине такой анализ целесообразно проводить параллельно с экспериментом. Здесь лишь укажем, что при моделировании мы

обнаружили эффекты насыщения ЯМР, когда мощность субгармоник с частотами $\sim 1/T_2$ стала сравнимой с мощностью колебаний на частоте ω_a . Если при этом выполнялось условие $T_1 \gg T_2$, то автоколебания приобретали релаксационную форму с периодом $\sim T_1$.

4. Итак, выше мы показали, что ядерные спины матрицы антиферромагнитного кристалла, имеющие частоты ЯМР, сравнимые с частотой колективных колебаний параметрических СВ, могут привести к автоколебаниям поглощаемой СВЧ мощности. Тот факт, что в близких по своим магнитным параметрам, но сильно отличающихся по структуре и составу антиферромагнетиках CsMnF_3 [1], CsMnCl_3 [2] и MnCO_3 [3] наблюдались разные автоколебания, причем в заметно различных условиях, свидетельствует в пользу модели «коллективно-ядерной» неустойчивости.

Следует отметить, что существует альтернативное объяснение релаксационной формы колебаний поглощаемой СВЧ мощности. Оно основано на эффекте насыщения параметрически возбуждаемой спин-волновой системы, суть которого состоит в приходе газа квазичастиц во вращающейся системе координат к термодинамическому равновесию с некоторой эффективной температурой [14]. Узких спектральных особенностей модуляционного отклика возбуждаемой системы в этом случае быть не должно.

Рассмотренная выше модель возникновения автоколебаний в системе параметрических СВ относится к пространственно-однородному случаю. В работе [15] экспериментально было обнаружено, что осцилляции СВЧ мощности в CsMnF_3 пространственно-неоднородны. В [15] была дана качественная картина эффекта с привлечением нелинейного самовоздействия СВ. Однако факт пространственно-неоднородных автоколебаний можно объяснить и в рамках «коллективно-ядерной» модели. Поскольку параметры релаксации ядерных спинов в окрестности границ образца, как правило, превышают аналогичные параметры для ядер в объеме, то автоколебательная неустойчивость возникает в первую очередь в области, где влияние границ кристалла пренебрежимо мало. В результате увеличение поглощения поля СВЧ в этой области вызовет в силу конкуренции мод (общего для нелинейных возбужденных систем эффекта) ослабление поглощения в приповерхностной части образца.

Автор благодарит А. В. Андриенко, В. И. Ожогина, В. И. Цифриновича и А. Ю. Якубовского за полезные обсуждения.

Список литературы

- [1] Котюжанский Б. Я., Прозорова Л. А. // Письма в ЖЭТФ. 1977. Т. 25. № 9. С. 412—415.
- [2] Андриенко А. В., Прозорова Л. А. // ЖЭТФ. 1980. Т. 78. № 6. С. 2411—2418.
- [3] Смирнов А. И. // ЖЭТФ. 1983. Т. 84. № 6. С. 2290—2305.
- [4] Андриенко А. В., Ожогин В. И., Якубовский А. Ю. // ЖЭТФ. 1985. Т. 89. № 5. С. 1839—1845.
- [5] Боровик А. Е. // Письма в ЖЭТФ. 1977. Т. 25. № 9. С. 438—442.
- [6] Калафати Ю. Д., Сафонов В. Л. // ЖЭТФ. 1986. Т. 90. № 2. С. 606—613.
- [7] Черепанов В. Б. // ЖЭТФ. 1986. Т. 90. № 1. С. 153—157.
- [8] Андриенко А. В., Ожогин В. И., Поддьяков Л. В., Сафонов В. Л., Якубовский А. Ю. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 1. С. 251—257.
- [9] Михайлов А. С., Фарзетдинова Р. М. // ФТТ. 1980. Т. 20. № 11. С. 3306—3315.
- [10] Zalkin A., Lee K., Templeton D. M. // J. Chem. Phys. 1962. V. 37. N 4. P. 697—699.
- [11] Лэкс М. Флуктуации и когерентные явления. М.: Мир, 1974. Гл. 12.
- [12] Захаров В. Е., Львов В. С., Старобинец С. С. // УФН. 1974. Т. 114. № 4. С. 609—654.
- [13] Wiesenfeld K., McNamara B. // Phys. Rev. A. 1986. V. 33. N 1. P. 629—642.
- [14] Калафати Ю. Д., Сафонов В. Л. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 10. С. 3189—3191.
- [15] Смирнов А. И. // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. № 4. С. 1369—1380.