

反強磁性共鳴における振動数変化 Frequency Shift in Antiferromagnetic Resonance

田 中 稔次郎*

Toshijiro Tanaka

[Received. Sept. 29, 1980]

The antiferromagnetic frequency shift $\Delta\omega$ in a antiferromagnet at high power is calculated within the framework of a random phase approximation. It is shown that $\Delta\omega$ can be expressed in terms of the number of uniform mode($k=0$) magnons and degenerate ($k\neq 0$) magnons excited dynamically. In spherical samples the anisotropy induced shift is negative, so that the resonance condition shifts towards lower fields. The magnon population in excess of the thermal number uniform mode and degenerate magnons is also evaluated.

§ 1. はじめに

磁気共鳴における強い高周波磁場の効果は共鳴振動数の変化や共鳴吸収形の非対称なずれ、あるいは早期の飽和現象として強磁性体フェライトにおいて最初に観測された。強磁性共鳴におけるこのような非線形効果は、種々のマグノンの緩和過程のうちどの機構が最も重要であるかを理解する上での有用な情報を持っているので非常に興味をもたれてきた。Damon¹⁾は強磁性体について非線形効果のすぐれたレビューを著している。反強磁性体については $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ²⁾, KMnF_3 ³⁾や MnCO_3 ⁴⁾などで強い高周波磁場による非線形効果が研究されているが、特にYamazaki と Date⁵⁾は $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ における種々の緩和率や振動数シフトの出力依存性を詳細に測定した。それによれば強いマイクロ波を用いると吸収線形や共鳴条件がその強さに依存する、すなわち共鳴磁場はマイクロ波磁場 h_1 の増加と共に高磁場の側にシフトすることが示された。ところでスピン構造など磁氣的性質がよく知られている典型的な反強磁性体 MnF_2 についての強い高周波磁場を用いた磁気共鳴の実験はこれまでほとんどなされていない。この論文の目的は反強磁性体における磁気共鳴の振動数シフトに対する異方性エネルギーの効果を考察し、スピン緩和の描像を明らかにすることである。我々はマグノン相互作用をランダム位相の近似(RPA)のわく内で考慮することによって、一様な($k=0$)モードの振動数シフトをマグノン理論を用いて計算した。反強磁性共鳴における振動数シフト $\Delta\omega$ は一様なモードのマグノンおよび他の $k\neq 0$ マグノンの熱平衡

*) Department of Physics, University of California, Santa Barbara, California 93106.

値からのズレの値, すなわち強い高周波磁場 h_1 によって励起されたダイナミカルなマグノンの個数によって表わされる。球状試料では $\Delta\omega$ は負になり, したがって外部磁場と共に減少する分枝の様なモードを励起した場合は, 共鳴磁場は低磁場側に変化することがわかる。また共鳴状態においてダイナミカルに励起された様なモードおよびそれと縮退した $k \neq 0$ のマグノンの個数も現象論的に求めた。^{6,7,8)} 次の節で反強磁性共鳴の振動数シフトをマグノン理論を用いて計算し, §3では議論を行う。

§2. 理 論

強い高周波磁場を用いた反強磁性共鳴(AFMR)における振動数シフトを求めるために高密度のマグノン系を仮定し, 様なモード($k=0$)のマグノンの振動数をマグノン相互作用を考慮することによって計算する。よく知られているようにもしマグノン相互作用が存在すると, この様なモードは他のマグノンによって作られるハートリーの平均場を見ることになり, その振動数はマグノンの個数に依存する訳である。このアイディアに従って我々は球状試料における様なモードの振動数シフトを計算しよう。交換相互作用, 異方性およびゼーマンエネルギーによって記述される反強磁性ハミルトニアンは次のように表わされる。

$$\mathcal{H} = 2J \sum_{(j,l)} \mathbf{S}_j \cdot \mathbf{S}_l - \frac{K}{2} [\sum_j (S_j^z)^2 + \sum_l (S_l^z)^2] - g\mu_B H_0 (\sum_j S_j^z + \sum_l S_l^z) \quad (1)$$

ただし添字 j および l はそれぞれ上向きおよび下向きの部分格子点を表わし, $\sum_{(j,l)}$ は異なる部分格子における最隣接ペアについての和を意味する。 \mathbf{S}_j は j 番目の原子のスピン演算子, J は反強磁性的交換積分($J>0$), K は単軸異方性定数($K>0$), g は g 値, μ_B はBohr磁子である。また外部磁場 H_0 は磁化容易軸すなわち z 軸方向に加えられているものとする。我々の取扱いでは簡単のために単軸性の形で異方性エネルギーを表現したが, 例えば MnF_2 の異方性エネルギーは双極子相互作用が主な原因となっており, このような物質ではハミルトニアン(1)は粗い近似になっているかもしれない。

OguchiとHonma⁹⁾の理論に従ってハミルトニアン(1)をスピン反転演算子について4次まで展開し, さらにマグノン演算子を導入してその主要項だけを集めハミルトニアンを対角化する。様なモード($k=0$)のマグノンエネルギーはこのハミルトニアンにRPA近似を用いることによって, α_0^\dagger , α_0 および β_0^\dagger , β_0 の係数として得られる。ただし, α_0^\dagger と α_0 は H_0 の増加と共にエネルギーが増大する分枝の $k=0$ マグノンモードのそれぞれ生成と消滅演算子, β_0^\dagger と β_0 はエネルギーが減少する分枝の $k=0$ モードの生成, 消滅演算子である。いま考えている系は高密度のマグノン系だから, マグノン相互作用をRPA近似を用いて取扱うことはかなりよい近似になっていると思われる。

ところで通常の磁気共鳴における振動数 $\omega_0^{(1)}$ は次のように表わされる。

$$\frac{\omega_0^{(1)}}{\gamma} = \sqrt{2H_E H_A + H_A^2} \left[1 - \frac{1}{4SN_k} \sum (f_k - 3) - \frac{1}{4SN_k} \sum f_k (\langle n_k^\alpha \rangle + \langle n_k^\beta \rangle) \right] \pm H_0 \left(1 - \frac{1}{2} \cdot \frac{\chi_{\parallel}}{\chi_{\perp}} \right) \quad (2)$$

$$\text{ただし } f_k = \frac{3 - \gamma_k^2}{\sqrt{(1 + H_A/H_E)^2 - \gamma_k^2}} \quad (3)$$

$$\gamma_k = \cos\left(\frac{1}{2} k_x a\right) \cos\left(\frac{1}{2} k_y a\right) \cos\left(\frac{1}{2} k_z c\right) \quad (4)$$

ここで N は格子点におけるスピンの総数、 S はスピン量子数、 z は異なった部分格子についての最近接スピン数、 a と c はそれぞれ a 、 b 軸および c 軸方向の格子定数である。また γ は磁気回転比 χ_{\parallel} と χ_{\perp} はそれぞれ平行および垂直帯磁率を表わし、交換磁場は $H_E = 2JSz/g\mu_B$ 、異方性磁場は $H_A = KS(1 - 1/2S)/g\mu_B$ で与えられる。 $\omega_0^{(1)}$ の添字 $\uparrow(\downarrow)$ は (2) の $+$ ($-$) に対応している。 $\langle n_k^{\alpha(\beta)} \rangle$ は Bose 因子で熱的に励起された $\alpha(\beta)$ -マグノンの占有数である。

強い高周波磁場を用いた磁気共鳴では圧倒的な数の $k=0$ のマグノンモードが励起され、それらが不純物散乱や表面散乱の過程を通して緩和時間 T_2 で $k \neq 0$ の縮退した状態へ急激に遷移し、この $k \neq 0$ マグノンはある特性時間 T_k でもって縮退していないマグノンの状態へと緩和して行く。ここで我々は縮退していない $k \neq 0$ モードのマグノンは格子と熱平衡にあること、すなわち非常に短いマグノン-フォノン緩和時間でもって、フォノンの熱浴に緩和するものと仮定する。さらに試料の熱効果を見捨ると強い高周波磁場共鳴による振動数シフト $\Delta \omega^{(1)}$ は次のように求まる。

$$\begin{aligned} \frac{\Delta \omega^{(1)}}{\gamma} &\equiv \frac{1}{\gamma} (\omega^{(1)} - \omega_0^{(1)}) \\ &= -\sqrt{2H_E H_A + H_A^2} \frac{\gamma \hbar}{4M_s} \sum_k \left[f_k (n_k^\alpha + n_k^\beta) \pm \frac{2H_E}{H_c} \left(1 - \frac{2H_A}{H_E} \right) (n_k^\alpha - n_k^\beta) \right] \end{aligned} \quad (5)$$

ただし M_s は部分格子の飽和磁化、 \hbar はプランク定数、臨界磁場 $H_c = (2H_E H_A + H_A^2)^{1/2}$ 、 $n_k^{\alpha(\beta)}$ は高周波磁場によって $\alpha(\beta)$ -マグノン分枝にダイナミカルに励起されたマグノンの占有数を表わす。ところで AFMR の測定は H_0 が H_c の近傍の磁場領域で期待されるので温度が 4.2°K で $H_0 \leq H_c$ の場合について振動数シフトを導出しよう。もし低振動数の一様モードが励起されたとすると、このときは (5) でマグノンの占有数を $n_k^\beta \approx 0$ 、 $n_k^\alpha = 0$ と置いてもよい。また高振動数の一様モードが励起されたときはその逆になる。したがって λ 番目のエネルギー分枝の一様なモードの振動数シフト $\Delta \omega^\lambda$ は次のように表わされる。

$$\frac{\Delta \omega^\lambda}{\gamma} = -\frac{\gamma \hbar H_A}{M_s} \left[n_0^\lambda + \sum_{k \neq 0} n_k^\lambda \right] \quad (\lambda = \alpha, \beta) \quad (6)$$

ただし $\sum'_{k \neq 0}$ は $k=0$ モードとエネルギー的に縮退している状態の波数ベクトルに関する和を取ること
を意味する。これまでの議論において我々は全ての縮退していないマグノンの占有数の熱平衡値
からのズレを無視した。さらに縮退したマグノンの波数ベクトルは小さいので(5)における n_k^λ の係
数を $k=0$ のときの値で近似した。振動数シフトの表式(6)から $\Delta \omega^\lambda$ は負の値をもち、それは主に異
方性磁場に起因することがわかる。それゆえ球状試料の場合には共鳴条件は低磁場側にシフトす
ることが示された。

次にKotthaus⁸⁾に従ってエネルギー吸収の速度についての方程式を用いて、共鳴によって励起
されたマグノンの個数を現象論的に計算する。 $k=0$ モードに蓄えられたエネルギーを W_0 とし、
縮退した $k \neq 0$ モードに蓄えられたエネルギーを $\sum'_{k \neq 0} W_k$ で表わすと各モードのエネルギー吸収の速
度は次のように表わされる。

$$\frac{dW_0}{dt} = P_a - W_0 \left[\left(\frac{1}{T_2} \right)_i + \left(\frac{1}{T_2} \right)_r \right] \quad (7)$$

$$\frac{d}{dt} \sum'_{k \neq 0} W_k = \frac{W_0}{(T_2)_i} - \sum'_{k \neq 0} \frac{W_k}{T_k} \quad (8)$$

ただし $P_a = \frac{W_0 H_A M_s h_1^2}{2 H_c \Delta H_0}$ は $k=0$ モードによって吸収される全エネルギー、 $(1/T_2)_i$ は $k=0$ モードが
縮退している $k \neq 0$ モードに移る緩和率、 $(1/T_2)_r$ は放射減衰すなわち共鳴の自然幅ともいうべき量
である。共鳴の全線幅 ΔH_0 は $\gamma(\Delta H_0) = (1/T_2)_i + (1/T_2)_r$ で与えられる。ここで共鳴における定常
状態、すなわちエネルギーの吸収および放出が一定の場合を考えると(7)(8)の左辺は零と置くこと
ができ、ダイナミカルに励起された $k=0$ および縮退した $k \neq 0$ のマグノン数は次のように得られる。

$$n_0^\lambda = \frac{M_s h_1^2}{2 \hbar \gamma (\Delta H_0)^2} \cdot \frac{H_A}{H_c} \quad (9)$$

$$\sum'_{k \neq 0} n_k^\lambda = \frac{(\Delta H_0)_i}{\Delta H_k} n_0 \quad (10)$$

ただし h_1 は高周波磁場の強さ、 $(\Delta H_0)_i = (1/T_2)_i$ である。(10)の導出にあたって $k=0$ モードから縮
退した $k \neq 0$ モードへ緩和率 T_k は波数に依らないとした。(9)(10)を(6)に代入すると振動数シフト $\Delta \omega^\lambda$
は

$$\frac{\Delta \omega^\lambda}{\gamma} = - \frac{H_A^2}{2 H_c (\Delta H_0)^2} \left[1 + \frac{(\Delta H_0)_i}{\Delta H_k} \right] h_1^2 \quad (11)$$

となる。したがって共鳴線のシフトは高周波磁場の強度に比例して変化することがわかる。

§ 3. 結 論

これまで議論してきたように、強い高周波磁場による反強磁性共鳴の振動数シフト $\Delta \omega^k$ をマグノンの相互作用理論によって RPA 近似のわく内で計算した。我々はこのシフトを一様なモードおよび縮退した $k \neq 0$ モードのマグノンのダイナミカルな励起による占有数によって表わしたが、この場合マグノン占有数の熱的なゆらぎは無視した。その結果球状試料では、振動数シフトは主に異方性磁場に起因し、その符号が負であることが明らかになった。したがって共鳴点は高周波磁場の強さが増加するに従って低磁場側にシフトする。このことから MnF_2 の共鳴吸収形は $CuCl_2 \cdot 2H_2O$ で観測されたようにマイクロ波の入力の増大と共に非対称になることが期待される。ただしシフトの方向は逆になる。このシフトの大きさから共鳴中のマグノン分布の知見を得ることができる。我々の理論では縮退していない全ての $k \neq 0$ マグノンは格子と熱平衡にあるとし、シフトに対する試料の熱効果は無視した。この仮定は一様なモードと縮退している $k \neq 0$ モードがマグノン緩和過程においてボトルネックの役割をはたし、それに比べてそれ以外の全マグノンと試料および熱浴の間のエネルギー移動は非常に速く常に熱平衡状態が成立っていることを意味している。しかしながら実験方法によってはエネルギーの移動がスムーズではなく、熱効果がしばしば共鳴線の大きなシフト（これはダイナミカルな原因によるものと逆向きであるが）を与え、それ等が打ち消し合うので詳細な測定が望まれる。この小論が典型的な反強磁性体 MnF_2 における強い AFMR の振動数シフトに対する異方性エネルギーの効果およびマグノン緩和に関する実験の刺激になることを期待したい。最後に、この研究を示唆し有益な議論をして頂いたカリフォルニア大学・サンタバーバラ・物理の V. Jaccarino 教授および A. King 博士に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) R.W.Damon, Magnetism, edited by G.T.Rade and H.Suhl(Academic, New York, 1963) Vol.1, Chap.11.
- 2) H.Van Till and J.A. Cowen, Bull. Amer. Phys. Soc. 7, 488(1962).
- 3) A.J. Heeger, Phys. Rev. 131, 608(1963).
- 4) A.S.Borovik-Romanov and L.A. Prozorova, Soviet Physics-JETP 19, 778(1964).
- 5) H.Yamazaki and M.Date, J.Phys. Soc. Jpn. 23, 737(1967).
- 6) T.Matcovich, H.S.Belson and N.Goldberg, J.Appl. Phys. 32, 163S(1961).
- 7) T.Matcovich, H.S.Belson, N.Goldberg and C.W.Haas, J.Appl. Phys. 33, 1287(1962).
- 8) J.P.Kotthaus, Ph.D.dissertation (University of California, Santa Barbara, 1972) (unpublished).
- 9) T.Oguchi and A.Honma, J.Phys. Soc. Jpn. 16, 79(1961).