

異方的反強磁性体の強い高周波磁場共鳴 における振動数変化

Resonant Frequency Shifts in Anisotropic Exchange Antiferromagnets at High Power

田 中 稔 次 朗
Toshijiro TANAKA

The AFMR frequency shift in anisotropic exchange antiferromagnets at high power is calculated by using the magnon theory within the framework of a random phase approximation. It is shown that the shift of the resonant frequency is related to the number of the uniform ($k=0$) mode and degenerate ($k\neq 0$) mode magnons which are excited dynamically. The magnon population in excess of the thermal number of magnons on the resonance is also evaluated.

§ 1 はじめに

強い高周波磁場による磁気共鳴は、スピン系の非線形非平衡現象として最近非常に注目されている。強磁性共鳴における非線形効果は、共鳴振動数の変化や吸収線形の非対称性、あるいは rf 帯磁率の早期飽和現象として、Damon¹⁾ や Bloembergen と Wang²⁾ によって最初に測定された。Suhl³⁾ はこれらの異常な現象が一様な ($k=0$) モードと縮退した ($k\neq 0$) モードマグノンの非線形結合によるマグノン不安定性に起因するものとして説明した。反強磁性共鳴については $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ⁴⁾、 KMnF_3 ⁵⁾、 MnCO_3 ⁶⁾ や MnF_2 ⁷⁾ など非線形効果が研究されてきた。特に Yamazaki と Date⁸⁾ は $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ のスピン—格子緩和時間や共鳴振動数シフトの高周波磁場依存性を詳しく測定した。これらの研究によってマグノンスペクトルやスピン系内部のエネルギー伝播の機構など、マグノン緩和過程がかなり明らかになってきた。

反強磁性共鳴のこれまでの議論は、交換相互作用がすべて等方的で、異方的な場合はまだ調べられていない。この論文の目的は、異方的な交換相互作用をもつ反強磁性体の強い高周波磁場効果を考察し、反強磁性共鳴 (AFMR) の振動数シフトおよびスピン緩和のメカニズムを明らかにすることである。われわれは最も重要と考えられる緩和過程を仮定し、一様モードと他のマグノンモードとの相互作用を表わす、非線形項をランダム位相近似 (RPA) で取り扱うことによって、一様なモードの振動数を計算する。一様なモード、すなわち反強磁性共鳴モ

ードの振動数シフトは、マグノン占有数の熱平均値からのズレ、それは高周波磁場によってダイナミカルに励起されたマグノンの個数、によって表わされる。異方的な交換相互作用が振動数シフトにどのように寄与するかなど、スピン系の非線形非平衡な運動を調べることによってその動的振舞いの描像を明らかにする。次の節で反強磁性共鳴の振動数シフトの表式を導出する。

§ 2 理 論

異方的な交換相互作用をもつ反強磁性体での共鳴振動数シフトに対する強い高周波磁場効果をマグノン理論を用いて計算する。考察する系は2部分格子反強磁性体で、最近接異方的交換相互作用およびゼーマンエネルギーから成る次のハミルトニアンによって記述される。

$$\mathcal{H} = 2J^z \sum_{\langle j, l \rangle} S_j^z S_l^z + J^\perp \sum_{\langle j, l \rangle} (S_j^+ S_l^- + S_j^- S_l^+) - g\mu_B H [\sum_j S_j^z + \sum_l S_l^z] \quad (1)$$

ただし、 $S_j^\pm = S_j^x \pm iS_j^y$ 、添字 j および l はそれぞれ上向きおよび下向きスピンの部分格子点を表わし、 $\sum_{\langle j, l \rangle}$ は異なる部分格子間の最近接スピン対についての和を取るものとする。 J^z および J^\perp は縦方向および横方向の反強磁性的交換積分 ($0 < J^\perp < J^z$)、 g は g -値、 μ_B はボーア磁子である。さらに、外部磁場 H は磁化容易軸、すなわち z 軸方向に加えられている。スピン間の磁気双極子相互作用はマグノンスペクトルの長波長領域での幅を拡げるが、一様モードのマグノンの振動数に直接寄与しないので、ハミルトニアンでは省略してある。しかしながら、マグノンスペクトルの長波長域での幅は、磁気共鳴での緩和機構に間接的に関係している。ハミルトニアン(1)の基底状態はスピントロップの起こる臨界磁場 H_c より小さい場合、各部分格子のスピンが互に反平行に整列したネール状態でもって近似的によく表現されるので、われわれはマグノン理論をこのネール状態から展開する。

反強磁性共鳴の振動数シフトに対する強い高周波磁場の効果を調べるために、一様な ($k=0$) マグノンモードのエネルギーをマグノン相互作用理論⁹⁾によって計算する。まず、ハミルトニアン(1)をスピン反転演算子で展開し、相互作用を表わす4次の項まで残す。ただし、それより高次の項は小さいので無視する。さらに、フーリエ変換すると次のようになる。

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & 2J^z S_z \sum_k [a_k^* a_k + b_k^* b_k + J^\perp / J^z \gamma_k (a_k b_k + a_k^* b_k^*)] \\ & + g\mu_B H \sum_k (a_k^* a_k - b_k^* b_k) \\ & - 2J^z z \frac{2}{N} \sum_{k_1} \sum_{k_2} \sum_{k_3} \sum_{k_4} \gamma_{k_3 - k_4} a_1^* a_2 b_3^* b_4 \delta(k_1 - k_2 + k_3 - k_4) \\ & - \frac{2J^\perp z}{4} \frac{2}{N} \sum_{k_1} \sum_{k_2} \sum_{k_3} \sum_{k_4} [\gamma_{k_1} a_1 b_2^* b_3 b_4 + \gamma_{k_1} b_1 a_2^* a_3 a_4 \\ & + \gamma_{k_2} b_1^* b_2^* b_3 a_4^* + \gamma_{k_2} a_1^* a_2^* a_3 b_4^*] \delta(k_1 + k_2 - k_3 - k_4) \end{aligned} \quad (2)$$

ただし、

田中：異方的反強磁性体の強い高周波磁場共鳴における振動数変化

$$\gamma_k = \frac{1}{z} \sum_{\rho} e^{i k \rho} \quad (3)$$

ここで S はスピンの大きさ， z は最近接格子点の数， N は全スピンの数を表わす． a_k^* および b_k^* は，それぞれ上向および下向き部分格子のスピンの生成演算子， a_k ， b_k はそれらの消滅演算子である． k は波数ベクトルで k に関する和は第1ブリルアンゾーンについて行う．(2)式の4次の項の添字1, 2, 3, 4は，それぞれ波数ベクトル k_1 ， k_2 ， k_3 ， k_4 の簡略化した表示である．また， ρ に関する和は最近接格子点についてとる．

次にハミルトニアン(2)を対角化するためにマグノンの生成，消滅演算子 α_k^* ， β_k^* および α_k ， β_k を導入する．

$$a_k = \alpha_k \cosh \theta_k - \beta_k^* \sinh \theta_k \quad (4)$$

$$b_k = -\alpha_k^* \sinh \theta_k + \beta_k \cosh \theta_k$$

ただし， θ_k は式(2)で4次の項を省略したスピンの生成演算子について2次のハミルトニアン \mathcal{H}_0 が対角型になるように選ぶ，すなわち

$$\sinh \theta_k = \frac{\xi \gamma_k}{\sqrt{1 - (\xi \gamma_k)^2}} \quad (5)$$

$$\cosh \theta_k = \frac{1}{\sqrt{1 - (\xi \gamma_k)^2}}$$

ここで， $\xi = J^{\perp} / J^z$ は交換積分の異方性を表わす．したがって，ハミルトニアン \mathcal{H}_0 は次のようになる．

$$\mathcal{H}_0 = 2 J^z S_z \sum_k [(\sqrt{1 - (\xi \gamma_k)^2} + h) \alpha_k^* \alpha_k + \sqrt{1 - (\xi \gamma_k)^2} - h) \beta_k^* \beta_k] \quad (6)$$

ただし， $h = g \mu_B H / 2 J^z S_z$ である．上式の $\alpha_k^* \alpha_k$ および $\beta_k^* \beta_k$ の係数は，自由な α_k および β_k マグノンモードのエネルギーを与える． α_k モードは磁場と共にその振動数が増大し， β_k モードは減小することがわかる．(4)式で与えられたボゴリューボフ変換を用いて，全ハミルトニアン(2)を対角化する．マグノン間の相互作用を表わす演算子について4次の項のうち，対角的な主要項のみを取り出すと，ハミルトニアンは次のようになる．

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & 2 J^z S_z \sum_k [\sqrt{1 - (\xi \gamma_k)^2} + h \alpha_k^* \alpha_k + \sqrt{1 - (\xi \gamma_k)^2} - h \beta_k^* \beta_k] \\ & - 2 J^z S_z \frac{2}{NS} \sum_k \sum_q [\cosh 2 \theta_k \sinh^2 \theta_q + \frac{1}{2} \gamma_{k-q} \sinh 2 \theta_k \sinh 2 \theta_q \\ & - \xi (\frac{1}{2} \gamma_q \cosh 2 \theta_k \sinh 2 \theta_q + \gamma_k \sinh 2 \theta_k \sinh^2 \theta_q) (\alpha_k^* \alpha_k + \beta_k^* \beta_k) \\ & + \cosh^2 \theta_k \sinh^2 \theta_q + \frac{1}{4} \gamma_{k-q} \sinh 2 \theta_k \sinh 2 \theta_q \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{2}\xi\gamma_{\kappa}\cosh 2\theta_{\kappa}\sinh 2\theta_q\{\alpha_{\kappa}^*\alpha_{\kappa}\alpha_q^*\alpha_q+\beta_{\kappa}^*\beta_{\kappa}\beta_q^*\beta_q\} \\
& +\{\cosh^2\theta_{\kappa}\cosh^2\theta_q+\sinh^2\theta_{\kappa}\sinh^2\theta_q+\frac{1}{2}\gamma_{\kappa-q}\sinh 2\theta_{\kappa}\sinh 2\theta_q \\
& -\frac{1}{2}\xi(\gamma_q\cosh 2\theta_{\kappa}\sinh 2\theta_q+\gamma_{\kappa}\sinh 2\theta_{\kappa}\cosh 2\theta_q)\}\alpha_{\kappa}^*\alpha_{\kappa}\beta_q^*\beta_q]
\end{aligned} \tag{7}$$

上式のマグノン相互作用を表わす4次の項に乱雑位相近似(RPA)を適用すると、ハミルトニアンは対角化され、マグノンのエネルギースペクトルが求まる。われわれの興味があるのは反強磁性共鳴振動数を与える一様な($k=0$)モードの振動数であり、 α_0 マグノン(ω_0^{\uparrow})および β_0 マグノン(ω_0^{\downarrow})について次のように得られる。

$$\begin{aligned}
\frac{\omega_0^{\uparrow\downarrow}}{\gamma} &= H_E[\sqrt{1-\xi^2}-\frac{2}{NS}\sum_q\frac{\sqrt{1-\xi^2}}{2}\left(\frac{\xi\gamma_q}{\sqrt{1-(\xi\gamma_q)^2}}-1\right) \\
& -\frac{2}{NS}\frac{1}{4}\sum_q\left[\left(\frac{2-\xi\gamma_q}{\sqrt{1-(\xi\gamma_q)^2}}+3-\xi\right)(n_q^{\uparrow\downarrow}-n_q^{\downarrow\uparrow})\right. \\
& \left. +\frac{1+\xi(1+\gamma_q)}{\sqrt{1-(\xi\gamma)^2}}n_q^{\uparrow\downarrow}\right]\pm H
\end{aligned} \tag{8}$$

ただし、 γ は磁気回転比、 $H_E^2=2J^2S_z/g\mu_B$ は交換磁場である。また、 $\omega_0^{\uparrow\downarrow}$ の添字 $\uparrow(\downarrow)$ は式(8)の $+$ ($-$)に対応している。 $n_q^{\uparrow}=\langle\alpha_q^*\alpha_q\rangle$ 、 $n_q^{\downarrow}=\langle\beta_q^*\beta_q\rangle$ はそれぞれ α_q および β_q モードのマグノン占有数を表わす。通常の反強磁性共鳴の場合、 $n_q^{\uparrow\downarrow}$ は占有数の熱平均値としてボーズ因子で与えられるので、(8)式の $\omega_0^{\uparrow\downarrow}$ は温度に依存する共鳴振動数を表わす。

強い高周波磁場を用いた反強磁性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、それが不純物散乱や表面のくぼみによる散乱などの過程を通して緩和時間 T_k で $k\neq 0$ の縮退した状態へ急激に遷移し、さらにこれらのマグノンはある特性時間 T_k でもって熱的マグノン状態へと緩和して行く。ただし縮退していない $k\neq 0$ モードのマグノンは格子系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 T_L でもってフォノンの熱浴に緩和するものと仮定する。反強磁性共鳴の種々の緩和過程を図1に示す。この過程における緩和機構は、図2に示すように磁気双極子相互作用によってマグノンスペクトルが長波長域で幅をもち、一様なモードに縮退している $k\neq 0$ モードが存在することに起因している。したがって、一様モードは運動量保存則を満たさなくてもいいような不純物散乱などによって、直接的に $k\neq 0$ の縮退モードへ遷移していく。

そうすると、縮退した $k\neq 0$ モードのマグノン占有数が熱平均から大きく変化するので、(8)式の $n_q^{\uparrow\downarrow}$ は次のように表わすことができる。

$$n_q^{\lambda}=\langle n_q^{\lambda}\rangle+\Delta n_q^{\lambda} \quad (\lambda=\uparrow,\downarrow) \tag{9}$$

田中：異方的反強磁性体の強い高周波磁場共鳴における振動数変化

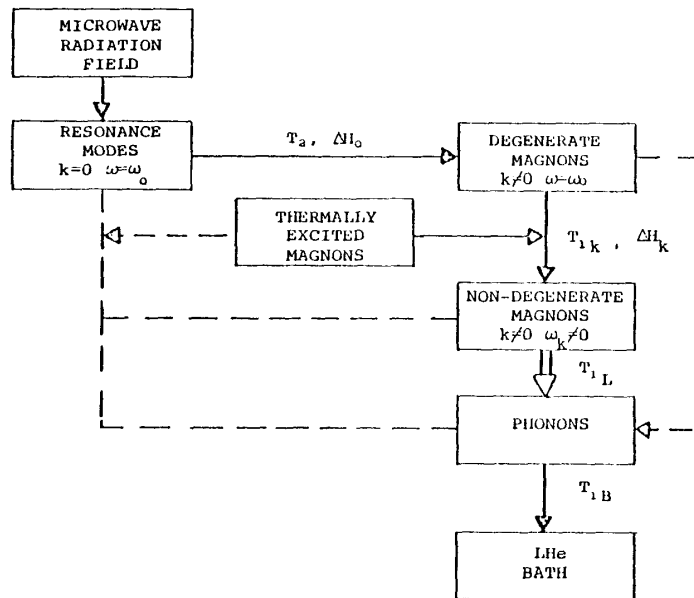


図1 反強磁性共鳴の緩和過程，実線が主要な過程を表す⁷⁾

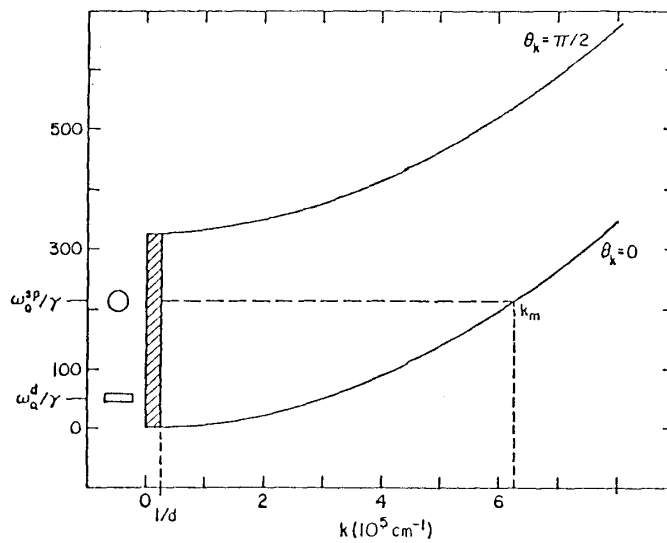


図2 長波長域のマグノンスペクトル⁷⁾

斜線の部分は静磁モードを，点線が縮退モードを表わす。

ただし， $\langle n_\alpha^\lambda \rangle$ は λ モードの熱平均値， Δn_α^λ は強い高周波磁場によって励起されたダイナミカルマグノンの個数である。(9)式を(8)式に代入して試料の熱効果を見捨てる，強い高周波磁場による反強磁性共鳴振動数シフト $\Delta\omega^\lambda$ は次のように求まる。

$$\frac{\Delta\omega^\lambda}{\gamma} \equiv \frac{1}{\gamma} (\omega^\lambda - \omega_0^\lambda)$$

$$= -H_E^z \frac{\gamma \hbar}{4 M_s} \sum_q \left[\left\{ \frac{2 - \xi \gamma_q}{\sqrt{1 - (\xi \gamma_q)^2}} + 3 - \xi \right\} (\Delta n_q^\lambda - \Delta n_q^\lambda) + \frac{1 + \xi(1 + \gamma_q)}{\sqrt{1 - (\xi \gamma_q)^2}} \Delta n_q^\lambda \right] \quad (10)$$

ここで、 $M_s = g\mu_B NS/2$ は部分格子磁化、 h はプランク定数である。

さて、外部磁場が存在する場合、一様な α_0 または β_0 モードが直線偏光によって励起されたとすると、等方的交換相互作用の反強磁性体の場合と同様な議論によって¹⁰⁾ 振動数シフトは次のように表わされる。

$$\frac{\Delta \omega^\lambda}{\gamma} = H_E^z \frac{\gamma \hbar}{4 M_s} \left(\frac{1 - 3J^\perp/J^z}{\sqrt{1 - (J^\perp/J^z)^2}} + 3 - J^\perp/J^z \right) [\Delta n_0^\lambda + \sum_{q \neq 0} \Delta n_q^\lambda] \quad (11)$$

ただし、 $\sum_{q \neq 0}$ は一様なモードに縮退した $q \neq 0$ マグノンモードの波数についての和をとることを示す。また、(11)式の導出に長波長近似を用いた。 $\Delta \omega^\lambda$ は交換積分の異方性 J^\perp/J^z に依存し、異方性が大きい程大きくなる。

次に Katthaus⁷⁾ の方法に従って、強い高周波磁場による共鳴中のダイナミカルマグノン数の分布を現象論的に計算する。反強磁性共鳴の実験は、これまで低い振動数の β モードしか行われていないので、ここでは議論を β モードにのみ限る。一様なモードおよび縮退モードのエネルギー吸収速度の方程式は、先の論文でも述べたように次のように表わされる¹¹⁾

$$\begin{aligned} \frac{dW_0^\beta}{dt} &= P_a^\beta - \frac{1}{T_2} W_0^\beta \\ \frac{d}{dt} \sum_{k \neq 0} W_k^\beta &= \frac{1}{T_2} W_0^\beta - \sum_{k \neq 0} \frac{W_k^\beta}{T_k} \end{aligned} \quad (12)$$

ただし、 W_0^β は一様 ($k=0$) な β モードに蓄えられたエネルギー、 $\sum_{k \neq 0} W_k^\beta$ は縮退した $k \neq 0$ モードに蓄えられたエネルギーである。また、 P_a^β は一様モードが電磁波から吸収する全エネルギーで次のように与えられる。

$$P_a^\beta = \frac{\omega_0^\beta M_z H_A h_1^2}{2 \Delta H_0 H_c} \quad (13)$$

ここで、スピントロップ臨界磁場 H_c および異方性磁場 H_A は、それぞれ

$$\begin{aligned} H_c &= \sqrt{1 - (J^\perp/J^z)^2} H_E^z \\ H_A &= (1 - J^\perp/J^z) H_E^z \end{aligned} \quad (14)$$

である。 h_1 は高周波磁場の強さ、 $\gamma \Delta H_0 = 1/T_2$ は反強磁性モードの緩和率、 M_z は温度 T における平均磁化である。なお放射減衰、すなわち共鳴の自然幅は無視するものとする。

磁気共鳴において定常状態が実現すると、一様モードによるエネルギーの吸収と放出が一定になり、それらは時間的に変化しないので(12)式の左辺は零になる。したがって、強い高周波磁

場によって励起されるダイナミカルマグノン数は次のように求まる。

$$\Delta n_0^\beta = \frac{M_A H_A h_1^2}{2 \gamma \hbar (\Delta H_0)^2 H_c} \quad (15)$$

$$\sum_{k \neq 0}' n_k^\beta = \frac{\Delta H_0}{\Delta H_k} \Delta n_0^\beta$$

ただし、 $\gamma \Delta H_k = 1 / T_k$ である。(15)式を(14)式に代入すると、反強磁性共鳴の振動数シフト $\Delta \omega^\beta$ は高周波磁場 h_1 の強さの関数として表わされる。マグノン不安定数を引き起すような臨界振動磁場 h_1^c 以下では、異方的交換相互作用をもつ反強磁性体での共鳴振動数は、 h_1 の増大とともにシフトすることがわかる。また、一様モードと縮退モードのダイナミカルマグノン数の比は、

$$\Delta n_0^\beta / \sum_{k \neq 0}' \Delta n_k^\beta = \Delta H_k / \Delta H_0 \quad (16)$$

で表わされる。すなわち、共鳴中のマグノン数の熱平均値からのズレの比は、一様モードと縮退モードの線幅の比に等しく、(15)式と(16)式から Δn_0^β および $\sum_{k \neq 0}' \Delta n_k^\beta$ の値を評価することができる。

§ 3 結 論

異方的交換相互作用をもつ反強磁性体で、強い高周波磁場を用いた磁気共鳴における共鳴振動数シフト $\Delta \omega^\lambda$ を、マグノン相互作用理論によって RPA 近似のわく内で計算した。そしてシフトに対する異方的な交換相互作用の効果を考察した。 $\Delta \omega^\lambda$ は共鳴によって励起された一様 ($k=0$) なモードおよび縮退 ($k \neq 0$) モード、すなわちダイナミカルマグノン数によって表わされているが、この場合マグノン占有数の熱的なゆらぎは無視した。振動数シフトの計算では、図1に示したように反強磁性モードの主要な緩和過程を仮定したが、その緩和機構では縮退した $k \neq 0$ モードがボトルネックになり、それ以外のすべての $k \neq 0$ モードのマグノンは格子系と熱平衡にある。これは一様モードと縮退モードの占有数のみが熱平均値からずれるという仮定である。このずれが高周波磁場の強度に比例し、振動数シフトに寄与することが示された。したがって、反磁場効果のない球状試料では振動数シフトは異方的交換磁場によって生じ、その符号は正になることがわかった。これは高周波磁場の強さが増大するのに応じて共鳴点が高磁場側にシフトすることを意味する。この結果は単軸異方性をもつ反強磁性体の振動数シフト¹⁰⁾と逆の方向になり、異方性エネルギーが何に起因するかについての重要な知見を与えてくれる。

最後に、この研究を行うにあたって研究費助成をして頂いた鹿児島県育英財団に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) R. W. Damon, *Rev. Mod. Phys.* **25** (1953) 239.
- 2) N. Bloembergen and S. Wang, *Phys. Rev.* **93** (1954) 72.
- 3) F. Keffer, *Spin Waves*, Encyclopedia of Physics, Vol. **18/2** (Springer-Verlag, Berlin, 1966).
- 4) H. Van Till and J. A. Cowen, *Bull. Amer. Phys. Soc.* **7** (1962) 488.
- 5) A. J. Heeger, *Phys. Rev.* **131** (1963) 608.
- 6) A. S. Borovik-Romanov and L. A. Prozorova, *Soviet Phys. -JETP* **19** (1964) 778.
- 7) J. P. Katthaus, Ph. D. dissertation (University of California, Santa Barbara, 1972).
- 8) H. Yamazaki and M. Date, *J. Phys. Soc. Jpn.* **23** (1967) 737.
- 9) T. Oguchi and A. Honma, *J. Phys. Soc. Jpn.* **16** (1961) 79.
- 10) T. Tanaka, *J. Phys. Soc. Jpn.* **50** (1981) 1495.
- 11) 田中稔次郎, 鹿児島県立短期大学紀要 第31号 (1980) 47.