

PACS numbers: 03.75.Hh, 75.30.Ds, 75.45.+j  
DOI: 10.3367/UFNr.0180.201008n.0890

## Кинетика и бозе-эйнштейновская конденсация параметрически возбуждённых магнонов при комнатной температуре

О. Дзяпко, В.Е. Демидов, С.О. Демокритов

Основой ферромагнетизма является квантово-механическое обменное взаимодействие между спинами отдельных атомов, устанавливающее спины параллельно друг другу. Фазовый переход между пара- и ферромагнитным состоянием вещества сопровождается расхождением длины когерентности, описывающей корреляцию продольных компонент спинов атомов, находящихся в разных точках пространства. Флуктуации на фоне такого равновесного состояния с полностью параллельными спинами обычно описывают посредством низкоэнергетических спин-волновых возбуждений, называемых магнонами. В состоянии термодинамического равновесия магноны не проявляют никакой когерентной динамики, так как при ненулевых температурах поперечные компоненты спинов остаются нескоррелированными даже в ферромагнитной фазе. Обычно магноны рассматриваются как газ элементарных возбуждений (квазичастиц), которые хорошо описываются в представлении квантовых чисел заполнения. Ранее [1] предпринимались попытки описать когерентные состояния магнонов по аналогии с когерентными состояниями фотонов [2], однако данное представление не получило дальнейшего развития и поэтому довольно редко используется для анализа экспериментальных результатов.

Бозе-эйнштейновская конденсация (БЭК) в газе бозонов является одним из наиболее удивительных квантовых эффектов, так как она приводит к возникновению спонтанной когерентности на макроскопических масштабах. Эффект выражается в формировании коллективного квантового состояния, объединяющего макроскопическое число бозонов. Если при постоянном числе частиц  $N$  уменьшать температуру бозонного газа  $T$  или, наоборот, увеличивать число частиц при постоянной температуре, то химический потенциал  $\mu$ , описывающий бозонный газ, будет возрастать, отображая изменение состояния газа. С другой стороны, из бозе-эйнштейновской статистики следует, что  $\mu$  не может быть больше, чем минимальная энергия бозонов  $\varepsilon_{\min}$ . Таким образом, условие  $\mu(N, T) = \varepsilon_{\min}$  определяет критическую плотность  $N_c(T)$ . Если плотность частиц в газе больше, чем  $N_c$ , то наблюдается БЭК — газ частиц спонтанно разделяется на две составляющие: 1) некогерентные частицы с плотностью  $N_c(T)$ , распределённые по всему спектру возможных состояния бозонов; 2) когерентный ансамбль частиц, находящихся в нижнем энергетическом состоянии с  $\varepsilon = \varepsilon_{\min}$  [3].

При температурах, значительно меньших температуры возникновения магнитного упорядочения  $T_c$ , магноны могут рассматриваться как газ слабозаимодей-

ствующих бозонов. Несколько групп ранее сообщали об экспериментальном наблюдении фазового перехода типа БЭК в системе магнитных возбуждений квантовых антиферромагнетиков  $\text{TlCuCl}_3$  [4, 5],  $\text{CsCuCl}_4$  [6, 7] и  $\text{BaCuSi}_2\text{O}_6$  [8], стимулированного магнитным полем. В данных материалах наблюдается фазовый переход из немагнитного синглетного состояния в упорядоченное триплетное состояние, сопровождающийся смягчением соответствующих мод при приложении магнитного поля, достаточного для преодоления антиферромагнитного обменного взаимодействия. Наблюдаемый переход, действительно, можно интерпретировать как БЭК магнитных возбуждений. Однако возбуждения в таких системах едва ли могут считаться магнонами — квантами распространяющихся волн прецессии спинов.

Конденсация Бозе–Эйнштейна также наблюдалась в системе ядерных спинов в сверхтекучем  $\text{He}^3$  в области температур порядка нескольких милликельвинов [9]. В данных экспериментах ячейка со сверхтекучим  $\text{He}^3$  помещалась в область сильного градиента магнитного поля. Накачка спиновой системы производилась с помощью радиочастотного электромагнитного поля на частоте ядерного магнитного резонанса (ЯМР). В ЯМР-экспериментах с импульсным возбуждением вектор намагниченности ядерных спинов отклонялся под действием мощного импульса радиочастотной накачки. Затем с помощью детектирующих катушек измерялся сигнал, индуцированный прецессией суммарной намагниченности  $\text{He}^3$ . После выключения внешней накачки происходило быстрое расфазирование суммарного индуцированного сигнала и он исчезал приблизительно через 1 мс вследствие сильного градиента магнитного поля. Однако после переходного процесса длительностью порядка 10 мс наблюдалось возникновение сигнала, соответствующего 100 %-ной когерентной прецессии суммарной намагниченности, на протяжении длительного времени, вплоть до 0,3–0,5 с. Такое поведение является прямой демонстрацией БЭК магнонов в  $\text{He}^3$ .

Совсем недавно было обнаружено, что в системе магнонов, постоянно возбуждаемых микроволновой параметрической накачкой, при определённых условиях наблюдается значительное перенаселение нижнего энергетического состояния даже при комнатных температурах [10, 11]. Возникновение такой перенаселённости было ассоциировано с БЭК магнонов. В то же время возможность БЭК квазичастиц не является очевидной с термодинамической точки зрения [12], так как квазичастицы характеризуются конечным временем жизни, которое часто оказывается сравнимым с характерным временем, необходимым для установления в системе термодинамического равновесия. Не менее важным фактом, позволяющим судить о наличии БЭК, является когерентность между частицами, заселившими нижнее состояние [13]. Таким образом, особенно важным для ясного понимания наблюдавшегося в ранней работе [10, 11] фазового перехода является изучение кинетических процессов термализации магнонного газа и экспериментальное наблюдение спонтанной когерентности магнонов в нижнем энергетическом состоянии.

Критическая температура БЭК в слабозаимодействующем газе бозе-частиц с заданной плотностью  $N$  определяется формулой Эйнштейна:  $k_B T_c = 3,31 (\hbar^2/m) N^{2/3}$ . Очевидно, что данное выражение не ограничивает критическую температуру сверху. Более того, оно может

О. Дзяпко, В.Е. Демидов, С.О. Демокритов. Institut für Angewandte Physik, Westfälische Wilhelms-Universität Münster, Deutschland  
E-mail: demokrit@wwu.de

быть переписано в виде  $N_c^{2/3} = k_B T m / (3,31 \hbar^2)$ , откуда видно, что БЭК может наблюдаться при любой температуре, в том числе комнатной, при условии достаточной плотности частиц.

Эксперименты по БЭК магновов при комнатной температуре проводились на монокристаллических плёнках железо-иттриевого граната (ЖИГ) толщиной 5 мкм. ЖИГ ( $Y_3Fe_2(FeO_4)_3$ ) является одним из наиболее изученных магнитных материалов. Плёнки ЖИГ характеризуются очень малыми магнитными потерями, обеспечивая, таким образом, большие времена жизни магновов в них: эти времена оказываются значительно больше характерных времён магнон-магнонного взаимодействия [14]. Данное условие является необходимым для наблюдения БЭК в системах квазичастиц, где нет строгого сохранения общего числа частиц [12]. Плёнки размерами около нескольких миллиметров помещались в однородное магнитное поле  $H = 700 - 1000$  Э, направленное по касательной к плоскости плёнок. Возбуждение магновов производилось посредством параллельной параметрической накачки с частотой 8,0–8,1 ГГц. Поле накачки создавалось микрополосковым резонатором шириной 25 мкм, который находился непосредственно на поверхности образца. Значение мощности накачки в импульсе изменялось от 0,1 до 6 Вт. Детальное описание процесса параметрической накачки дано в [10, 11, 13–16].

Перераспределение магновов, инжектированных накачкой, по спектру изучалось с помощью метода мандельштам-бриллюэновского рассеяния света (МБРС) с временным разрешением 10 нс в квазиобратной геометрии рассеяния [17]. Использование данной геометрии позволяет одновременно детектировать магновы с волновыми векторами  $\mathbf{k}$ , лежащими в интервале  $k = \pm 2 \times 10^5$  см<sup>-1</sup>, определяемым величиной волнового вектора рассеиваемого света. Из теории МБРС следует, что наблюдаемое в эксперименте значение интенсивности рассеянного света на данной частоте пропорционально произведению числа населённости магновов на этой частоте и приведённой плотности состояний, учитывающей только состояния магнонного спектра, лежащие в экспериментально детектируемом интервале волновых векторов. Давая таким образом доступ к измерению временной эволюции спектрального распределения магновов, метод МБРС позволяет исследовать кинетические и термодинамические процессы в магнонной системе. Типичное значение спектрального разрешения экспериментальной установки, ограниченное разрешением оптического спектрометра, составляло 250 МГц. При необходимости разрешение спектрометра можно было улучшить до 50 МГц, однако при этом уменьшалась чувствительность измерений [10, 11]. Детальное описание используемой экспериментальной установки можно найти в [10, 11, 15, 17].

Рисунок 1 иллюстрирует низкочастотную часть спектра магновов в касательно намагниченной ферромагнитной плёнке, вычисленную для значений параметров плёнок ЖИГ, используемых в эксперименте, и магнитного поля  $H = 700$  Э. Сплошными линиями показаны дисперсионные кривые, соответствующие двум граничным случаям ориентации волнового вектора магновов  $\mathbf{k}$  по отношению к направлению постоянного магнитного поля  $\mathbf{H}$ : параллельной (так называемая обратная объёмная волна) и перпендикулярной (поверхностная волна). Обе кривые сходятся в точке  $k = 0$  на частоте одно-

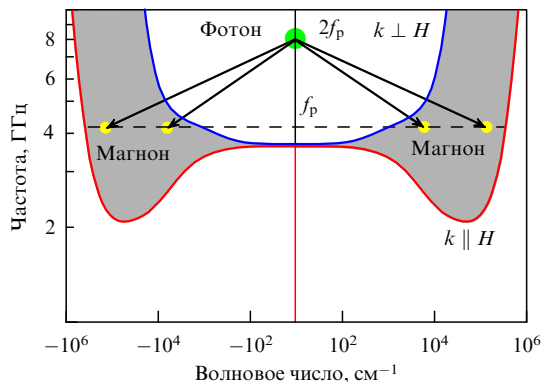


Рис. 1. Низкочастотная часть спектра магновов в касательно намагниченной плёнке ЖИГ при  $H = 700$  Э. Стрелки иллюстрируют процесс параметрической накачки.

родного ферромагнитного резонанса. Состояния магновов с волновыми векторами, направленными под промежуточными углами относительно намагниченности, заполняют область, ограниченную этими двумя кривыми. Как видно из рисунка, энергетический магнонный спектр характеризуется отличной от нуля минимальной частотой  $f_{\min} = 2,10$  ГГц, которая достигается при ненулевом значении волнового вектора  $k_{\min} = 3 \times 10^4$  см<sup>-1</sup> для волн, бегущих параллельно намагниченности. Частотный минимум при ненулевом значении волнового вектора является следствием конкуренции между диполь-дипольным и обменным взаимодействиями, определяющими спектр магновов. Отметим, что значение  $f_{\min}$  меняется при изменении значения внешнего магнитного поля, в то время как, изменяя толщину плёнки, можно варьировать значение соответствующего волнового вектора  $k_{\min}$ .

На рисунке 1 показан также процесс параметрической накачки магнонного газа. Данный процесс может рассматриваться как рождение двух первичных магновов микроволновым фотоном электромагнитного поля накачки. При этом значение волнового вектора рождаемых магновов не является строго заданным. Единственным ограничением является условие, что возбуждённые магновы должны иметь противоположные значения волновых векторов. В результате действия накачки спектральное распределение магновов становится сильно неравновесным: возникает область в фазовом пространстве вблизи частоты  $f_p$  с высокой плотностью первичных магновов, порядка  $10^{18} - 10^{19}$  см<sup>-3</sup>. Следует отметить, что хотя первичные магновы и возбуждаются когерентной накачкой, сами они не являются когерентными по отношению друг к другу: два магнона возбуждаются одновременно, поэтому только сумма их фаз (а не непосредственно значения фаз отдельных магновов) оказывается связанной с фазой микроволнового фотона накачки.

Благодаря сильному магнон-магнонному взаимодействию первичные магновы быстро перераспределяются в фазовом пространстве. Основными механизмами, ответственными за перераспределение энергии внутри магнонной системы, являются процессы двух- и четырёхмагнонного рассеяния (см. [14], гл. 11). В высококачественных плёнках ЖИГ доминирует процесс четырёхмагнонного рассеяния. Данный процесс может рассматриваться как механизм неупругого рассеяния, поскольку его результа-

том является изменение энергий рассеиваемых магнонов. Следовательно, четырёхмагнонное рассеяние ведёт к расплыванию первично инжектированных магнонов по всему спектру, сохраняя при этом число магнонов в системе постоянным. Отметим, что процесс трёхмагнонного рассеяния, который не сохраняет число частиц, не играет значительной роли в описываемых экспериментах [15]. Параллельно с процессом перераспределения происходит вынос энергии из магнонной системы как результат взаимодействия магнонов с фононами (спин-решёточная релаксация). Ниже будет показано, что процессы рассеяния магнонов друг на друге, сохраняющие постоянным их общее число, значительно быстрее процесса спин-решёточной релаксации. В данных условиях ступенчатая накачка должна приводить к образованию газа магнонов, описываемого устойчивым квазиравновесным распределением магнонов в фазовом пространстве, которое устанавливается после некоторого переходного периода, характеризуемого временем термализации. Распределения магнонов, иллюстрирующие эволюцию магнонного газа к квазиравновесному состоянию, показаны на рис. 2 для мощности накачки 0,7 Вт. Приведён набор МБРС-спектров, измеренных при разных значениях времён задержки относительно начала импульса накачки. При нулевой задержке,  $\tau = 0$ , дополнительные магноны пока ещё не накачиваются в систему и наблюдаемое распределение соответствует спектру тепловых магнонов. На начальном этапе процесса накачки ( $\tau = 30$  нс) распределение магнонов вблизи минимальной частоты  $f_{\min}$  никоим образом не затронуто. Однако числа заполнения магнонов в частотном интервале от 2,5 ГГц до 4 ГГц (последняя частота близка к частоте первичных магнонов) значительно возрастают. Дальнейшая эволюция спектрального распределения магнонов, представленная на рис. 2, обнаруживает насыщение населённостей магнонов. Действительно, уже при  $\tau = 60$  нс числа заполнения магнонов во всём частотном диапазоне, кроме области вблизи  $f_{\min}$ , достигают насыщения. В свою очередь, плотности магнонов вблизи  $f_{\min}$  начинают возрастать при  $\tau > 30$  нс и насыщаются при значительно больших значениях времён задержки, как показано на рис. 3. Наблюдаемое поведение можно представить как постепенное заселение магнонных состояний, начинающееся на частоте первичных магнонов  $f_p$  и распространяющееся в виде бегущей волны в направлении минимальной частоты  $f_{\min}$ . Последнее означает, что возрастание населённости на дне спектра возникает как результат многократного повторения отдельных событий неупругого рассеяния. Данный факт позволяет сделать очень важное промежуточное заключение: поскольку магноны вблизи  $f_{\min}$  создаются в результате многократного ряда последовательных процессов рассеяния, не сохраняющих индивидуальные фазы участвующих в них магнонов, любое возникновение когерентности между магнонами на дне спектра, наблюдаемое в эксперименте, должно быть спонтанным.

После того как населённость магнонов на дне спектра насыщается, магнонный газ входит в устойчивое состояние. Сравнение наблюдаемого распределения магнонов с распределением Бозе–Эйнштейна подтверждает, что это устойчивое состояние соответствует состоянию термодинамического квазиравновесия.

Благодаря нелинейности четырёхмагнонного рассеяния, время термализации магнонного газа быстро умень-

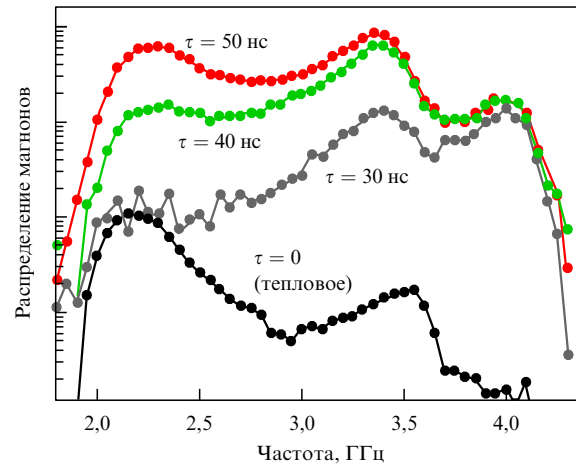


Рис. 2. Эволюция распределения магнонов после включения накачки. Примечательно постепенное заполнение магнонных состояний, начинающееся с высоких частот и распространяющееся в сторону дна спектра.

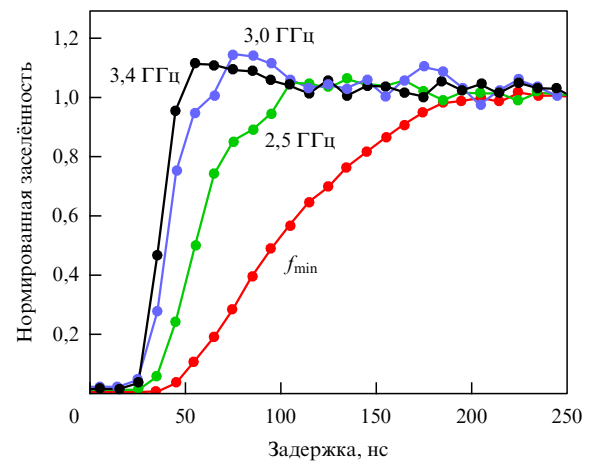
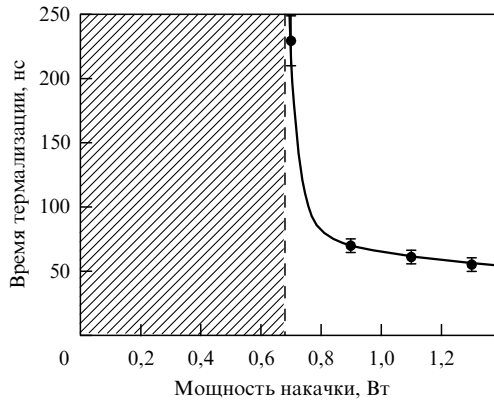


Рис. 3. Эволюция населённости магнонов на разных частотах как функция времени относительно начала импульса накачки. Чётко видно медленное, адиабатическое, изменение населённости на частоте  $f_{\min}$ .

шается с увеличением мощности накачки в области выше порогового значения 0,7 Вт, как показано на рис. 4. Как видно из рисунка, время термализации достигает порядка 50 нс при мощности накачки 1,3 Вт, что значительно меньше, чем время жизни магнонов в ЖИГ, определяемое спин-решёточной релаксацией. Заштрихованная область на рис. 4 соответствует области малых мощностей накачки, при которых полная термализация магнонного газа не может быть достигнута.

После достижения магнонами квазиравновесного состояния, дальнейшее увеличение мощности накачки приводит к возрастанию плотности магнонного газа как функции времени. Как следствие, химический потенциал  $\mu$  также возрастает. При использованных в экспериментах значениях мощности накачки это возрастание химического потенциала магнонного газа происходит значительно медленнее, чем процесс термализации, что позволяет рассматривать его как адиабатическое. На рисунке 5 изображены измеренные при больших временных задержках МБРС-спектры магнонов, отображающие, следовательно, квазиравновесные распределения магнонов для значений мощности накачки  $P = 4$  Вт и



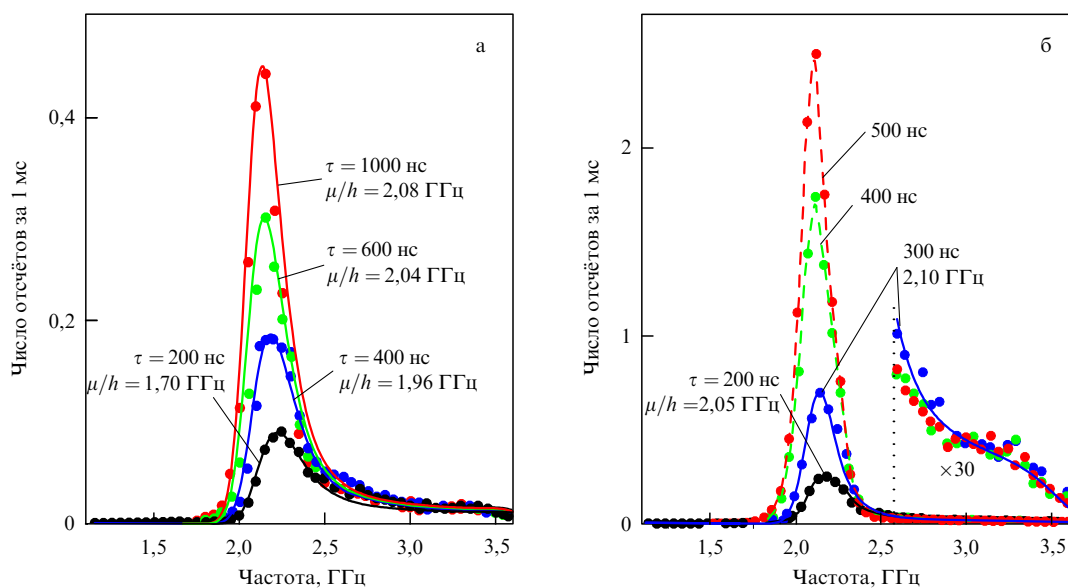
**Рис. 4.** Время термализации магнного газа как функция мощности накачки. Заштрихованная область соответствует находящимся ниже порога термализации  $P_{th} = 0,7$  Вт значениям мощностей, при которых устанавливается устойчивое состояние не является термодинамически квазиравновесным.

$P = 5,9$  Вт. Символами показаны экспериментальные данные, сплошными линиями — распределения магнов, вычисленные на основе статистики Бозе–Эйнштейна [15] с использованием химического потенциала  $\mu$  в качестве подгоночного параметра. Как видно из рис. 5а, химический потенциал возрастает со временем и достигает насыщения при  $\mu/h = 2,08$  ГГц. Данное значение  $\mu$  хотя и очень близко к  $\varepsilon_{min} = hf_{min}$ , но всё же меньше этой величины. Большие значения химического потенциала, очевидно, не могут быть достигнуты при данной мощности накачки, вследствие ухода магнов из системы из-за спин-решёточной релаксации. Рисунок 5б иллюстрирует процессы, происходящие при большей мощности накачки,  $P = 5,9$  Вт. При этом значении мощности химический потенциал достигает максимального значения  $\mu/h = 2,10$  ГГц уже при  $\tau = 300$  нс и соответственно наблюдаемое распределение может интерпретироваться как критическое распределение  $n_c(f)$ . Дальнейшее действие накачки ведёт к эффекту, который с полным правом

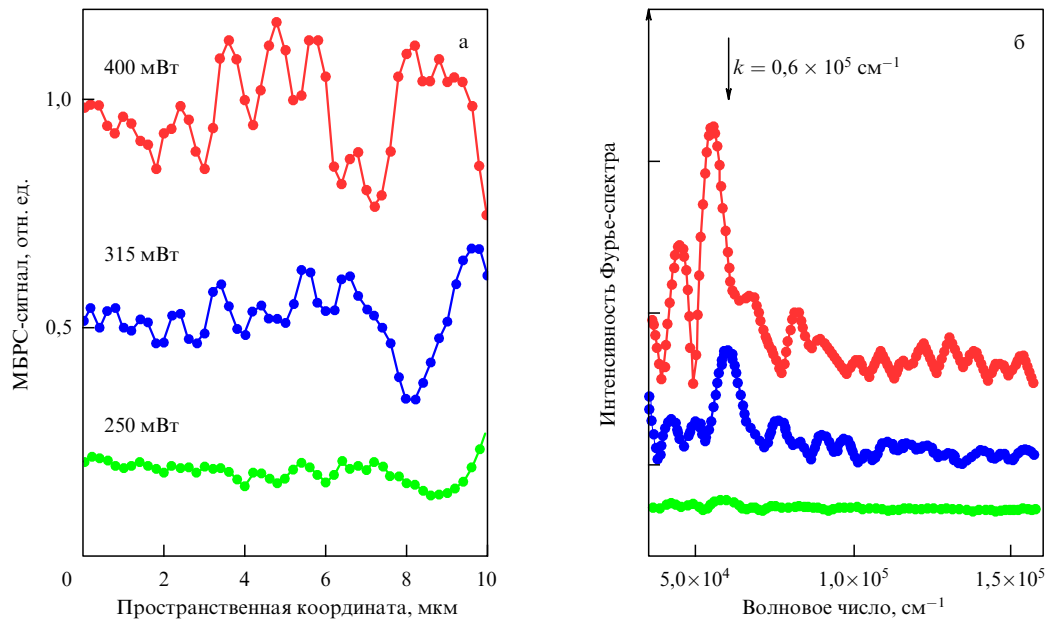
может трактоваться как БЭК магнов: все инжектированные в дальнейшем магны скапливаются на дне спектра, никак не влияя на значения населённостей магнов на высших частотах. Для лучшей иллюстрации последнего утверждения на рис. 5б дополнительно изображены высокочастотные участки распределений магнов в увеличенном масштабе. Приведённые данные указывают на то, что МБРС-спектры, наблюдаемые при  $\tau > 300$  нс, не могут быть описаны с помощью простого увеличения значения температуры, входящей в выражение для функции распределения Бозе–Эйнштейна, так как большим температурам соответствуют большие числа заполнения на *всех* частотах. Таким образом, экспериментальные результаты, приведённые на рис. 5б, указывают на формирование в газе магнов бозе-эйнштейновского конденсата.

Полезным представляется вычислить разность между распределением магнов при некоторой задержке  $\tau > 300$  нс и критическим распределением  $n_c(f)$ . На рисунке 5б чётко видно, что эта разность отличается от нуля только в узкой частотной области вблизи  $f_{min}$ , причём ширина этой области определяется только частотным разрешением спектрометра. Оптические измерения с максимальным спектральным разрешением показали, что собственная ширина этой области меньше 50 МГц. Более того, микроволновые измерения показали, что эта ширина меньше 6 МГц, что соответствует высокой степени когерентности магнов в конденсате. Данное значение ширины соответствует сужению распределения магнов по отношению к начальному распределению более чем на шесть порядков мелочины,  $\Delta f < 10^{-6} k_B T/h$ .

Неоспоримым доказательством когерентности образующегося коллективного квантового состояния магнов могло бы стать наблюдение интерференции между двумя конденсатами. В исследуемой системе такой эксперимент может быть проведён непосредственно без каких-либо значительных дополнительных модификаций. Действительно, поскольку состоянию магнного спектра с минимальной энергией соответствуют две



**Рис. 5.** (а) МБРС-спектры магнного газа, возбуждаемого накачкой с мощностью 4 Вт, для разных времён задержки относительно времени начала импульса накачки. (б) То же, что и на рис. а, для мощности накачки 5,9 Вт. Химический потенциал достигает критического значения при задержке в 300 нс.



**Рис. 6.** (а) Пространственное распределение интенсивности МБРС-сигнала конденсата магнонов, измеренное с пространственным разрешением 250 нм. (б) Фурье-спектры пространственных профилей, представленных на рис. а. Стрелкой указано значение волнового вектора стоячей волны, полученное на основе вычислений дисперсионной зависимости магнонов.

точки фазового пространства с волновыми векторами  $k_{\min} = \pm 3 \times 10^4 \text{ см}^{-1}$ , то и накопление магнонов происходит одновременно в этих двух точках. Следовательно, при конденсации этих магнонов происходит формирование двух конденсатов с противоположными волновыми векторами. В свою очередь, интерференция между этими двумя конденсатами должна приводить к образованию стоячей волны пространственной плотности конденсата. Рисунок 6 иллюстрирует экспериментальные профили пространственной плотности конденсата при разных мощностях накачки. Следует отметить, что, в отличие от измерений в предыдущих экспериментах, данные измерения проводились в непрерывном режиме. Действительно, поскольку начальная фаза формируемого конденсата является произвольной, то в импульсном режиме эта фаза варьировалась бы от периода к периоду, что в сумме не давало бы единой интерференционной картины. Поэтому для данного эксперимента возбуждение конденсата производилось с помощью непрерывной накачки. Для этой цели был разработан специальный резонатор накачки, который позволял избежать существенного нагрева образца. По этой же причине значения мощности накачки, необходимые для наблюдения БЭК в этих экспериментах, не соответствуют напрямую предыдущим значениям, указанным на рис. 5.

На приведённых экспериментальных профилях чётко видно появление стоячей волны, образующейся в результате интерференции двух конденсатов. Для того чтобы подчеркнуть факт формирования стоячей волны, нами были вычислены фурье-образы измеренных пространственных профилей, которые приведены на рис. 6б. Как видно из рисунка, в пространственных фурье-спектрах, соответствующих большим мощностям накачки, возникает ярко выраженная компонента с волновым вектором, хорошо согласующимся с удвоенным значением волнового вектора конденсатов. Данный факт является прямым доказательством когерентности возникающих конденсатов.

Таким образом, в данной статье приведены результаты исследования процесса термализации магнетонного газа, возбуждаемого микроволновой параметрической накачкой, и перехода его к термодинамически квазиравновесному состоянию, характеризующемуся ненулевым химическим потенциалом. Показано, что при некотором критическом значении мощности накачки наступает критическое распределение магнонов и происходит их бозе-эйнштейновская конденсация. Полученные результаты находятся в полном соответствии с имеющимися представлениями о БЭК и убедительно демонстрируют существование этого квантового макроскопического эффекта при комнатной температуре.

Работа выполнена при поддержке Deutsche Forschungsgemeinschaft. С.О.Д. хотел бы отметить особую роль А.С. Боровика-Романова в становлении его как учёного.

## Список литературы

1. Rezende S M, Zagury N *Phys. Lett. A* **29** 47 (1969)
2. Glauber R J *Phys. Rev.* **131** 2766 (1963)
3. Einstein A "Quantentheorie des einatomigen idealen Gases" *Sitzungsberichte Preuß. Akad. Wiss. Berlin* **1** 3 (1925)
4. Nikuni T et al. *Phys. Rev. Lett.* **84** 5868 (2000)
5. Rügge Ch et al. *Nature* **423** 62 (2003)
6. Coldea R et al. *Phys. Rev. Lett.* **88** 137203 (2002)
7. Radu T et al. *Phys. Rev. Lett.* **95** 127202 (2005)
8. Jaime M et al. *Phys. Rev. Lett.* **93** 087203 (2004)
9. Demokritov S O et al. *Nature* **443** 430 (2006)
10. Bunkov Yu M, Volovik G E J. *Low Temp. Phys.* **150** 135 (2008)
11. Volovik G E J. *Low Temp. Phys.* **153** 266 (2008)
12. Snoke D *Nature* **443** 403 (2006)
13. Demidov V E et al. *Phys. Rev. Lett.* **99** 037205 (2007)
14. Sparks M *Ferromagnetic-Relaxation Theory* (New York: McGraw-Hill, 1964)
15. Dzyapko O et al. *New J. Phys.* **9** 64 (2007)
16. Demidov V E et al. *Phys. Rev. Lett.* **100** 047205 (2008)
17. Demokritov S O, Hillebrands B, Slavin A N *Phys. Rep.* **348** 441 (2001)
18. Cottam M G, Lockwood D J *Light Scattering in Magnetic Solids* (New York: Wiley, 1986)