

АНИЗОТРОПИЯ ЗАТУХАНИЯ ЯДЕРНОГО СПИНОВОГО ЭХА В ПЛЕНКАХ ЖЕЛЕЗО-ИТТРИЕВОГО ФЕРРИТА-ГРАНАТА

Г. Н. Абеляшев, В. Н. Бержанский, С. Н. Полулях, Н. А. Сергеев

Симферопольский государственный университет
333036, Симферополь, Украина

Поступила в редакцию 20 октября 1994 г.

Исследуется затухание сигналов двухимпульсного ядерного спинового эха в монокристаллических пленках феррита-граната иттрия во внешнем магнитном поле. Предлагается модель, описывающая экспериментально наблюдаемую анизотропию скорости релаксации сигналов эха для ядер октаэдрических ионов железа.

1. ВВЕДЕНИЕ

Основные особенности ядерного магнитного резонанса (ЯМР) в магнитоупорядоченных веществах обусловлены сильными сверхтонкими взаимодействиями, что приводит к существенной зависимости параметров ЯМР от состояния электронной спиновой системы образца [1, 2]. При этом одной из проблем, требующей дальнейшего развития, является исследование процессов ядерной спиновой релаксации при наличии сверхтонких взаимодействий с обменно-связанной электронной спиновой системой образца.

В качестве объекта исследований выбран железо-иттриевый феррит-гранат (ЖИГ) $Y_3Fe_5O_{12}$, магнитные свойства которого изучены достаточно хорошо [1–3]. Кристалл ЖИГ представляет собой диэлектрический ферримагнетик с кубической элементарной ячейкой [1]. Магнитными ионами являются ионы Fe^{3+} , находящиеся в S -состояниях и занимающие кристаллографические позиции как с тетраэдрическим, так и с октаэдрическим анионным окружением. Ферримагнетизм ЖИГ обусловлен отрицательным обменным взаимодействием между октаэдрической и тетраэдрической магнитными подрешетками.

Для изучения процессов ядерной релаксации авторами работы [4] исследовались поликристаллические образцы ЖИГ, обогащенные магнитным изотопом ^{57}Fe (спин $I = 1/2$). Экспериментально обнаружено, что при температуре $T = 77$ К скорость поперечной релаксации в образцах, обогащенных изотопом ^{57}Fe , выше, чем в образцах ЖИГ с естественной концентрацией этого изотопа. Аналогичное влияние концентрации магнитного изотопа ^{57}Fe на скорость затухания сигналов ядерного спинового эха в монокристаллических полидоменных пленках ЖИГ при $T = 77$ К обнаружено в работе [5]. При этом отмечается наличие корреляции скоростей продольной и поперечной релаксации и неэкспоненциальный характер затухания сигналов эха.

На основе анализа экспериментальных результатов в работах [4, 5] делается вывод о том, что поперечная релаксация в образцах обоих типов обусловлена косвенным взаимодействием ядерных спинов посредством виртуальных магнонов электронной намагниченности (взаимодействия Сула–Накамуры). Следует отметить, что эксперименталь-

но наблюдаемая зависимость скорости релаксации от частотного положения спектральной линии в [4, 5] не исследуется и остается неясной.

С целью более детального изучения влияния частотного положения спектральной линии на скорость поперечной ядерной релаксации в настоящей работе исследуется затухание сигналов двухимпульсного эха от ядер ^{57}Fe в пленках ЖИГ во внешнем насыщающем магнитном поле.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

В качестве образца использовалась пленка ЖИГ с максимальной концентрацией магнитного изотопа ^{57}Fe ($\approx 96\%$) из серии образцов, использовавшихся в работе [5]. Выбор образца обусловлен необходимостью получения отношения сигнал/шум, достаточного для проведения экспериментов во внешнем магнитном поле. Синтез пленки $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ осуществлялся методом жидкофазной эпитаксии на подложке размером $10 \times 10 \times 0.2 \text{ мм}^3$ из гадолиний-галлиевого граната, ориентированной в плоскости (111). Толщина пленки, определенная интерферометрическим методом, оказалась равной 8 мкм.

Эксперименты выполнялись на некогерентном импульсном ЯМР спектрометре. Взаимно перпендикулярные стационарное и радиочастотное (РЧ) магнитные поля ориентировались в плоскости пленки. Длительности первого и второго возбуждающих РЧ импульсов составляли соответственно 2 и 4 мкс. Запись спектров ЯМР осуществлялась путем регистрации зависимости амплитуды сигнала двухимпульсного эха от частоты заполнения возбуждающих импульсов. Кривые затухания сигналов эха регистрировались по зависимости амплитуды сигнала двухимпульсного эха от временного интервала между возбуждающими импульсами τ при фиксированной частоте заполнения возбуждающих импульсов, равной частоте исследуемой спектральной линии.

В структуре ЖИГ ионы ^{57}Fe занимают как тетраэдрические, так и октаэдрические позиции. Локальная симметрия тетраэдрических позиций является кубической. Соответственно, для ядер ^{57}Fe тетраэдрических ионов железа в насыщающих внешних магнитных полях экспериментально наблюдалось только изменение резонансной частоты единственной спектральной линии в соответствии с гиромагнитным отношением γ . Скорость затухания сигналов эха в пределах погрешности эксперимента не зависела ни от величины, ни от ориентации магнитного поля.

Симметрия октаэдрических позиций является одноосной, и локальная ось симметрии совпадает с одним из четырех направлений типа $\langle 111 \rangle$. Соответственно, в структуре ЖИГ имеются четыре типа неэквивалентных октаэдрических позиций, различающихся ориентацией локальной оси симметрии. В насыщающих магнитных полях спектр ЯМР ядер ^{57}Fe октаэдрических ионов железа состоит из четырех спектральных линий с шириной порядка 0.05 МГц. Частотное положение каждой спектральной линии описывалось выражением

$$\nu = (\nu_0 - \gamma B) + \nu_A (3 \cos^2 \theta - 1) \quad (1)$$

с величиной анизотропной константы $\nu_A \approx -0.95 \text{ МГц}$ [5]. В выражении (1) θ — угол между локальной осью симметрии третьего порядка и направлением вектора электронной намагниченности в образце, определяемым ориентацией внешнего магнитного поля B , ν_0 — изотропная константа.

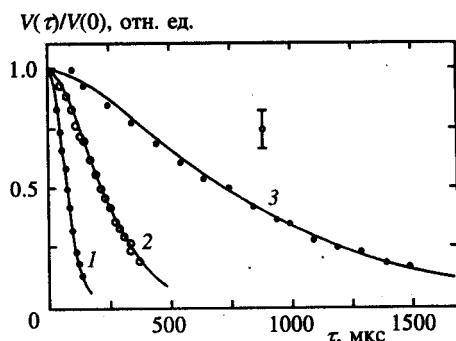


Рис. 1. Зависимость амплитуды сигнала эха от временного интервала между возбуждающими импульсами. Экспериментальные зависимости соответствуют $\theta = 48^\circ$ (1), 76° (2), 90° (3). Сплошные линии — аппроксимация экспериментальных результатов выражением (4) при $\tau_c = 500$ мкс и $\sigma = 32$ кГц (1), $\sigma = 5$ кГц (2), $\sigma = 0.78$ кГц (3)

Частотное положение спектральной линии ЯМР от ядер, локальная ось симметрии которых нормальна плоскости пленки, не зависит от ориентации поля в плоскости пленки. Учитывая, что в анализируемой плоскости (111) направления типа $\langle 111 \rangle$ отсутствуют, в качестве оси отсчета удобно выбрать направление $\langle 1\bar{1}0 \rangle$, лежащее в плоскости пленки. Тогда, вводя угол φ между направлением магнитного поля и осью $\langle 1\bar{1}0 \rangle$, получим

$$\cos^2 \theta = \frac{8}{9} \cos^2(\varphi + \psi_j), \quad (2)$$

где $\psi_1 = -\pi/2$, $\psi_2 = -\pi/6$, $\psi_3 = \pi/6$. Из выражений (1), (2) следует, что в частном случае $\varphi = 0$ спектр ЯМР октаэдрических ядер состоит из двух спектральных линий при $\theta = 90^\circ$ и $\theta \approx 35.26^\circ$. При проведении экспериментов спектр ЯМР, соответствующий углу $\varphi = 0$, использовался для привязки ориентации поля к осям кристалла.

В результате проведенных экспериментов обнаружено, что в насыщающих магнитных полях скорость затухания сигналов эха от ядер железа в октаэдрических позициях практически не зависела от величины, но существенно зависела от ориентации поля. Максимально быстро затухало эхо от ядер с $\theta \approx 40-50^\circ$, и скорость затухания монотонно убывала при $\theta \rightarrow 90^\circ$ (рис. 1) и $\theta \rightarrow 19.47^\circ$. Как следует из выражения (2), углы, меньшие чем $\theta \approx 19.47^\circ$ при ориентации поля в плоскости пленки не реализуются.

Для аппроксимации зависимости амплитуды V сигнала эха от временного интервала между возбуждающими импульсами τ использовалось выражение

$$V(\tau) = V(0) \exp(-k_n \tau^n) \quad (3)$$

при $n = 1, 2, 3$; коэффициент k_n , зависящий от угла θ , и начальная амплитуда эха $V(0)$ определялись методом наименьших квадратов. Для медленно затухающих сигналов эха минимальное среднеквадратичное отклонение получено при $n = 1$. Аналогичные зависимости для быстро релаксирующих сигналов наилучшим образом аппроксимировались выражением (3) при $n = 2$.

3. ОБСУЖДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Анализ экспериментальных результатов проводился в рамках модели спектральной диффузии [6, 7]. В работе [7] показано, что затухание сигналов эха может быть описано выражением (3) при $n = 1$ и $n = 2$ только в случае лоренц-марковского процесса

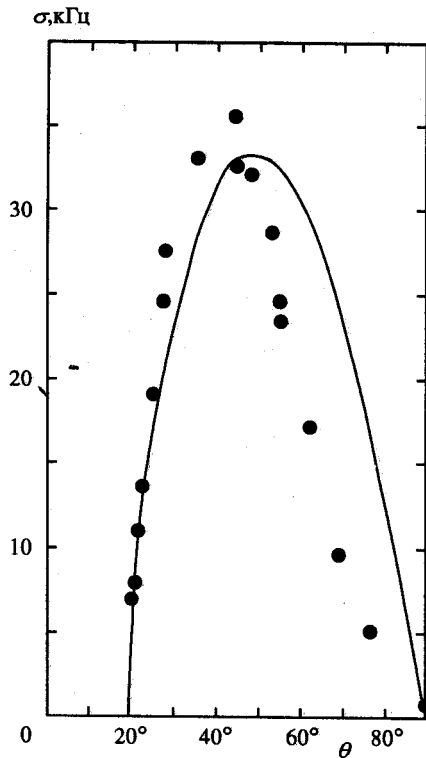


Рис. 2. Зависимость амплитуды флуктуаций от угла между локальной осью симметрии третьего порядка и ориентацией вектора электронной намагниченности, полученная путем аппроксимации экспериментальных результатов выражением (4) при $\tau_c = 500$ мкс. Сплошная линия получена из выражения (6) при $\sigma_0 = 25$ кГц

в предельных случаях соответственно быстрой ($\sigma\tau_c \ll 1$) и медленной ($\sigma\tau_c \gg 1$) спектральной диффузии. Здесь τ_c — время корреляции случайного процесса, σ — амплитуда флуктуаций. В общем случае лоренц-марковского процесса сигнал двухимпульсного эха затухает по закону

$$V(\tau) = V(0) \exp \left\{ -2\sigma \left[\tau - \tau_c \ln \left[2 - \exp(-\tau/\tau_c) \right] \right] \right\}. \quad (4)$$

При использовании выражения (4) для аппроксимации экспериментальных данных предполагалось, что время корреляции случайного процесса не зависит от ориентации магнитного поля относительно осей кристалла и анизотропия скорости затухания сигналов эха обусловлена анизотропией σ . На основании того, что время, через которое амплитуда сигналов падает в e раз, существенно больше времени корреляции в случае быстрого процесса спектральной диффузии и намного меньше τ_c в случае медленной спектральной диффузии [7], для времени корреляции получена оценка $\tau_c \approx 500$ мкс (рис. 1).

Аппроксимация кривых спада сигналов эха функцией (4) при различных значениях угла θ осуществлялась с помощью ЭВМ. При фиксированном значении τ_c последовательно перебирались величины σ из интервала $0.01\tau_c^{-1} \leq \sigma \leq 100\tau_c^{-1}$, чем обеспечивался учет процессов как быстрой, так и медленной спектральной диффузии. Наименьшее среднеквадратичное отклонение для кривых спада эха, соответствующих различным значениям угла θ , получено при $\tau_c = 500 \pm 150$ мкс. Значения σ , соответствующие наименьшим среднеквадратичным отклонениям при $\tau_c = 500$ мкс, приведены на рис. 2

как функция угла θ .

С целью оценки погрешности в определении величины σ описанная выше аппроксимация использовалась для кривых спада сигналов эха, полученных из экспериментальных зависимостей путем изменения амплитуд сигналов эха на случайные величины в пределах погрешности эксперимента. В результате многократного использования этой процедуры (порядка 25 раз для каждой из кривых спада сигналов эха) получено, что предлагаемая аппроксимация является устойчивой, и при $\tau_c = 500$ мкс величина σ определяется с точностью не хуже 10%.

Кроме того, при обработке экспериментальных зависимостей $V = V(\tau)$ восстанавливались начальные амплитуды $V(0)$ сигналов эха, соответствующие нулевой задержке второго импульса. Оказалось, что начальная амплитуда $V(0)$ одинакова для всех спектральных линий и не зависит от ориентации поля в плоскости пленки.

Дополнительно проведенные расчеты показали, что по наименьшему среднеквадратичному отклонению и наилучшему качественному согласию в поведении экспериментальных и аппроксимирующих зависимостей $V = V(\tau)$ из всех процессов спектральной диффузии, приведенных в работе [7], лоренц-марковский процесс является наиболее предпочтительным. Следует также отметить, что предлагаемый процесс спектральной диффузии использовался также в работе [8] для описания затухания сигналов ядерного спинового эха в образцах ЖИГ с естественным содержанием изотопа ^{57}Fe . Удовлетворительные результаты при использовании указанного процесса связаны, по-видимому, с тем, что флуктуации локальных полей на ядрах ^{57}Fe обусловлены динамическими процессами в обменно-связанной электронной спиновой системе, для которой характерны обменное сужение и лоренцева форма линии магнитного резонанса.

Для объяснения полученной зависимости $\sigma = \sigma(\theta)$ будем исходить из того, что основным механизмом уширения спектральной линии ЯМР является неоднородное уширение, обусловленное разбросом резонансных частот ядерных спинов. На основании того, что ширины экспериментально зарегистрированных спектральных линий и восстановленные значения начальных амплитуд сигналов эха для этих линий не зависят от ориентации магнитного поля, неоднородное уширение спектральных линий октаэдрических ядер железа будем считать изотропным.

Следуя работе [5], в качестве взаимодействия, ответственного за затухание сигналов эха, примем взаимодействия Сула–Накамуры. Основные особенности взаимодействий Сула–Накамуры в условиях неоднородного уширения спектральной линии исследованы в работе [9], где показано уменьшение эффективности этих взаимодействий с ростом величины неоднородного уширения. Это явление обусловлено тем, что взаимодействия Сула–Накамуры осуществляются путем излучения виртуального магнона электронной намагниченности одним ядерным спином и поглощения этого магнона другим ядерным спином. Указанный процесс возможен лишь для таких ядер, разность резонансных частот которых меньше энергии взаимодействия (выраженной в единицах частоты). Рассмотрим ядро, резонансная частота которого совпадает с центром неоднородно уширенной спектральной линии. Величина эффективного поля взаимодействий Сула–Накамуры [1, 9] на этом ядре прямо пропорциональна числу ядерных спинов, имеющих такие же резонансные частоты. С увеличением неоднородного уширения число таких ядер уменьшается, что и приводит к снижению вклада взаимодействий Сула–Накамуры в затухание сигнала эха.

Непосредственное использование взаимодействий Сула–Накамуры для описания анизотропии поперечной релаксации ядерной намагниченности может быть основано

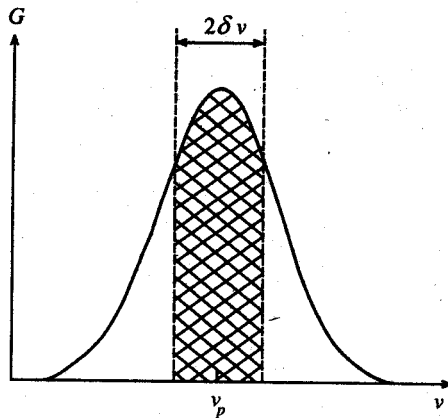


Рис. 3. Функция, описывающая неоднородное уширение спектральной линии (частотная зависимость числа резонансных спинов). Штриховые линии — диапазон частотных флуктуаций при ориентационной неоднородности вектора электронной намагниченности

на анизотропии этих взаимодействий. Для кристаллографических позиций с одноосной симметрией анизотропная часть эффективного поля взаимодействий Сула–Накамуры описывается угловым множителем $3 \cos^2 \theta - 1$. Минимум этих взаимодействий, а следовательно, и минимальная скорость релаксации должны достигаться при $\theta = \theta_m \approx 54.7^\circ$ ($\cos^2 \theta_m = 1/3$). Максимально быстро должно затухать эхо от ядер с $\theta = 90^\circ$. Однако такое поведение качественно противоречит экспериментально наблюдаемому.

С целью устранения указанных противоречий допустим, что вектор электронной намагниченности в каждой точке образца отклонен от направления магнитного поля на некий малый случайный угол и данный разброс является не статическим, а динамическим. Для анизотропных октаэдрических позиций ориентационная неоднородность электронной намагниченности приводит к разбросу значений угла θ в выражении (1) и, следовательно, к дополнительному разбросу частот ядерного резонанса.

Специфика тонкопленочного образца состоит в том, что вектор электронной намагниченности практически не выходит из плоскости пленки. Тогда ориентационная неоднородность электронной намагниченности будет приводить к разбросу значений угла φ в выражении (2). Полагая отклонения $\delta\varphi$ малыми, путем дифференцирования уравнения (1) с учетом (2) получим

$$|\delta\nu| = 2 \left| \nu_A \cos \theta \sqrt{8 - 9 \cos^2 \theta} \delta\varphi \right|. \quad (5)$$

Ориентационные флуктуации электронной намагниченности в каждой точке образца будем полагать независимыми и достаточно быстрыми, так что если $\tau_{сМ}$ — время корреляции этих флуктуаций, то $\tau_{сМ} |\delta\nu| \ll 1$ и релаксацию вследствие непосредственных флуктуаций резонансных частот в первом приближении учитывать не будем («динамическое сужение»). В противном случае скорость релаксации определялась бы только флуктуациями локальных магнитных полей на ядрах железа и не зависела бы от концентрации магнитного изотопа, что противоречит экспериментальным результатам работы [5]. С другой стороны, указанный процесс может привести к флуктуациям эффективного поля взаимодействий Сула–Накамуры.

Действительно, пусть $G(\nu)$ функция, описывающая неоднородное уширение спектральной линии в отсутствие ориентационной неоднородности электронной намагниченности (сплошная кривая на рис. 3). При достаточно малых значениях $\delta\varphi$ величина

частотного разброса $\delta\nu$ в выражении (5) будет меньше, чем ширина функции $G(\nu)$. При ориентационных флуктуациях электронной намагниченности (флуктуациях $\delta\varphi$) частота каждого из спинов, резонансная частота которого при $\delta\varphi = 0$ лежала бы в частотном интервале $\nu_p \pm \delta\nu$, может оказаться равной центральной частоте ν_p функции $G(\nu)$. Верно и обратное. Частоты «центральных» спинов также могут изменяться в пределах частотного интервала $\nu_p \pm \delta\nu$.

В некоторой области образца, размер которой определяется радиусом взаимодействий Сула–Накамуры [1], при флуктуациях $\delta\varphi$ возможно отклонение частотного распределения спинов от равновесного. Рассмотрим два предельных случая: частоты всех спинов из интервала $\nu_p \pm \delta\nu$ либо совпадают, либо не совпадают с центральной частотой функции $G(\nu)$. Учитывая, что величина эффективного поля взаимодействий Сула–Накамуры пропорциональна числу резонансных спинов, получим, что для спина с «центральной» частотой это поле будет изменяться от некоторого минимального (в первом приближении нулевого) значения до максимального и амплитуда флуктуаций будет пропорциональна площади заштрихованной области на рис. 3.

Полагая, что амплитуда флуктуаций σ лоренц-марковского процесса пропорциональна амплитуде флуктуаций эффективного поля взаимодействий Сула–Накамуры, можно записать

$$\sigma = \sigma_0 \cos \theta \sqrt{8 - 9 \cos^2 \theta}, \quad (6)$$

где величина σ_0 зависит от исходной концентрации магнитных ядер в образце, энергии взаимодействий Сула–Накамуры, величины $\delta\varphi$ и т. д. Расчетная зависимость $\sigma = \sigma(\theta)$, полученная из выражения (6) при $\sigma_0 = 25$ кГц, приведена на рис. 2 сплошной линией.

Полученное качественное соответствие расчетных и экспериментальных зависимостей $\sigma = \sigma(\theta)$ свидетельствует о том, что в исследованных образцах анизотропия скорости ядерной поперечной релаксации определяется ориентационной неоднородностью вектора электронной намагниченности. Заметное расхождение между теоретической кривой и экспериментальными точками на рис. 2 может быть обусловлено анизотропией неоднородного уширения спектральной линии ЯМР, частичным выходом электронной намагниченности из плоскости пленки и рядом других не учитывавшихся в первом приближении факторов.

При проведении экспериментов во внешнем магнитном поле оценивалась скорость продольной релаксации по частоте следования возбуждающих импульсов. Оказалось, что скорость релаксации продольной компоненты ядерной намагниченности также анизотропна, растет при увеличении скорости поперечной релаксации и эта связь подобна той, которая приводится в работе [5]. По-видимому, механизм продольной релаксации обусловлен «модуляцией» ядерно-ядерных взаимодействий, что является дополнительным подтверждением необходимости учета динамики электронной спиновой системы при анализе ядерной релаксации в магнитоупорядоченных веществах. Однако эта проблема требует детального исследования.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, предлагаемый механизм анизотропии скорости поперечной релаксации состоит в модуляции эффективного числа взаимодействующих ядер вследствие

ориентационных флуктуаций электронной намагниченности. Данный механизм позволяет объяснить анизотропию скорости затухания сигналов на качественном уровне и интерпретировать наблюдавшуюся экспериментально в работе [5] зависимость скорости поперечной релаксации от исходной концентрации ядерных спинов в образце для ядер в октаэдрических позициях.

Литература

1. М. И. Куркин, Е. А. Туров, *Ядерный магнитный резонанс в магнитоупорядоченных веществах и его применение*, Наука, Москва (1990).
2. Е. А. Туров, М. П. Петров, *Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках*, Наука, Москва (1969).
3. С. Ш. Генделев, Ю. М. Яковлев, *Монокристаллы ферритов в радиоэлектронике*, изд. «Радио», Москва (1975).
4. М. П. Петров, А. П. Паугурт, *ФТТ* **12**, 2829 (1970).
5. В. Н. Бержанский, С. Н. Полулях, *ФТТ* **31**, 256 (1989).
6. J. R. Kluder and P. W. Anderson, *Phys. Rev.* **125**, 912 (1962).
7. К. М. Салихов, А. Г. Семенов, Ю. Д. Цветков, *Электронное спиновое эхо и его применения*, Наука, Новосибирск (1976).
8. S. K. Ghosh, *Phys. Rev. B* **5**, 174 (1972).
9. P. Pincus, V. Jaccarino, D. Hone, and Tin Ngwe, *Phys. Lett. A* **27**, 54 (1968).