

УДК 537.622

© 1990

## ВЛИЯНИЕ СЛУЧАЙНЫХ ПОЛЕЙ НА СПЕКТРЫ ЯМР ОРБИТАЛЬНО ВЫРОЖДЕННЫХ ИОНОВ В КУБИЧЕСКИХ МАГНЕТИКАХ

М. А. Иванов, В. Я. Митрофанов, А. Я. Фишман, А. А. Шемяков

Проведены теоретическое и экспериментальное исследования спектрального распределения частот переходов на ядерных подуровнях ян-теллеровских (ЯТ) центров в кубических магнетиках со случайными низкосимметричными кристаллическими полями. Показано, что неоднородное уширение линий ЯМР определяется анизотропной частью сверхтонкого взаимодействия на ЯТ примеси. Наблюдается хорошее соответствие теоретических результатов опытным данным по спектрам ЯМР на ионах  $Mn^{3+}$  в системах  $Mn_{1-x}Zn_xFe_2O_4$  и YIG.

В настоящей работе исследуется спектральное распределение частот переходов на ядерных подуровнях ЯТ центров в магнитных кубических кристаллах со случайными кристаллическими полями. Рассматривается поведение ЯТ ионов, основное состояние которых двукратно вырождено (ионы  $Mn^{3+}$ ,  $Cr^{2+}$ ,  $Fe^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  и т. д.) в соответствующей октаэдрической или тетраэдрической координации.

Теоретические результаты сравниваются с опытными данными для ионов  $Mn^{3+}$  в магнетиках со структурой шпивели и граната. Анализируются результаты исследований систем  $Mg_{1.03}Fe_{1.97}O_4$  [1] и YIG:  $Mn^{3+}$  [2], а также данные собственных исследований кристаллов  $Mn_{1-x}Zn_xFe_2O_4$  ( $x=0, 0.18$ ).

Измерения зависимостей интенсивности сигналов ЯМР от частоты возбуждающих импульсов при фиксированных значениях угла между намагниченностью и осью [001] в плоскости (110) проведены методом спинового эха при  $T=1.8$  К. Использовался спектрометр ЯМР, работающий в диапазоне частот 200—800 МГц, аналогичный описанному в работе [3]. Условия возбуждения сигналов ЯМР следующие: длительности импульсов  $\tau_1=0.5$  и  $\tau_2=1$  мс с задержкой между импульсами 3 мс, частота повторения возбуждающих импульсов 50 Гц. Амплитуда возбуждающих импульсов выбиралась по максимуму сигнала ЯМР. Исследуемые образцы имели форму цилиндра, у которых одна из осей [110]-типа совпадала с осью цилиндра. Поворот вектора намагниченности  $M$  в плоскости (110) осуществлялся вращением образца вокруг оси цилиндра в насыщающем магнитном поле  $H=5$  кЭ, направленном перпендикулярно к этой оси.

Полученные экспериментальные результаты представлены на рис. 4, 5 в заключительной части работы. Показано, что развитая теория находится в качественном согласии с опытными данными.

### 1. ЯТ центры в кубическом кристаллическом поле

Рассмотрим двукратно вырожденные ЯТ центры ( $E$ -терм) с октаэдрической ( $Mn^{3+}$ ,  $Cr^{2+}$ ) или тетраэдрической координацией ( $Fe^{2+}$ ) в магнитной матрице. Гамильтониан примесного ЯТ центра может быть представлен в следующем виде:

$$H = H_1 + H_2 + H_3,$$

$$H_1 = \hat{U}_{E\delta} [D(S_x^2 - S(S+1)/3) + h_{E\delta}] + \hat{U}_{E\epsilon} [D(S_x^2 - S_y^2)/\sqrt{3} + h_{E\epsilon}] - (H_{ex}S),$$

$$H_2 = A_1(IS) + \frac{A_2}{2} [\hat{U}_{E\delta} (3I_x S_x - (IS)) + \sqrt{3} \hat{U}_{E\epsilon} (I_x S_x - I_y S_y)],$$

$$H_3 = C [\hat{U}_{E\delta} (3I_x^2 - I(I+1)) + \sqrt{3} \hat{U}_{E\epsilon} (I_x^2 - I_y^2)]/3 - g_N^2 \beta_N (HI),$$

$$\hat{U}_{E\delta} = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad \hat{U}_{E\epsilon} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad (1)$$

где  $h_{E\mu}$  — компоненты случайного низкосимметричного поля;  $H$ ,  $H_{ex}$  — внешнее магнитное и молекулярное поля;  $S$  — электронный спин;  $I$  — ядерный спин;  $\hat{U}_{E\mu}$  — орбитальные операторы;  $D$  — параметр одноосной анизотропии;  $A_1, A_2$  — параметры изотропного и анизотропного сверхтонкого взаимодействий соответственно;  $C$  — параметр квадрупольного взаимодействия.

Для исследования спектра ЯМР рассматриваемых систем необходимо перейти от электронных волновых функций, на которых определен гамильтониан (1), к вибронным волновым функциям, представляющим решение электронно-колебательной задачи для кубического  $E$ -терма. При этом для систем, где нецентральность ЯТ иона отсутствует, можно пренебречь влиянием псевдоан-теллеровских взаимодействий с  $T_{1u}$ -деформациями на структуру вибронных уровней [4, 5]. При переходе к вибронному базису, как правило, можно ограничиться учетом трех нижайших вибронных состояний  $E$  и  $A_1$  ( $A_2$ ), если дисперсия случайных полей  $\Gamma$  и параметр анизотропии  $D$  меньше параметра ангармонизма  $W$  ЯТ иона ( $W \sim 10^2 \text{ см}^{-1}$ ) [6].

Рассмотрим вначале структуру спектра ЯМР, описываемую гамильтонианом (1), в предельном случае динамического эффекта ЯТ. Представим гамильтониан электронно-ядерной системы в виде суммы невозмущенной части  $H_1$  и возмущения  $V = H_2 + H_3$ . Низкосимметричные случайные поля и поле одноосной анизотропии снимают орбитальное вырождение на ЯТ центре. При этом выражение для энергий расщепленного орбитального дублета с магнитным квантовым числом  $M$  имеет вид

$$E_{\pm}(M) = \pm q [D^2(M)(1 - 3f(\alpha)) + h^2 + 2hD(M)(1 - 3f(\alpha))^{1/2} \cos(\varphi - \gamma)]^{1/2},$$

$$D(M) = D[M^2 - S(S+1)/3], \quad h = (h_{E\delta}^2 + h_{E\epsilon}^2)^{1/2}, \quad f(\alpha) = \sum_{i < j} \alpha_i^2 \alpha_j^2,$$

$$\text{ctg } \varphi = h_{E\delta}/h_{E\epsilon}, \quad \text{tg } \gamma = \sqrt{3} (\alpha_x^2 - \alpha_y^2) (3\alpha_x^2 - 1)^{-1}, \quad (2)$$

где  $\alpha_i$  — направляющие косинусы намагниченности,  $q$  — фактор вибронной редукции [6].

Поправки первого порядка теории возмущений к энергиям (2), обусловленные квадрупольным и электронно-ядерным взаимодействиями, равны

$$\Delta E_{\pm}(M, m) = A_1 M m \pm F(M, m) (1 - 3f(\alpha))^{1/2} \cos(\psi - \gamma),$$

$$F(M, m) = A_2 M m + C [m^2 - I(I+1)/3],$$

$$\text{tg } \psi = [h_{E\epsilon} + \sqrt{3} D(M) (\alpha_x^2 - \alpha_y^2)/2] / [h_{E\delta} + D(M) (3\alpha_x^2 - 1)/2]. \quad (3)$$

Выражение (3) записано в приближении  $|A_1| \gg |A_2|$ ;  $m$  — проекция ядерного спина на ось квантования, параллельную  $H_{ex}$ .

При низких температурах  $T \ll (D^2 + \Gamma^2)^{1/2}$  ( $\Gamma$  — дисперсия случайных низкосимметричных полей), когда заселено лишь состояние  $E$  ( $M=S$ ), коэффициент поглощения  $K(\omega)$  равен

$$K(\omega) = \sum_{m=-I}^I R_m(\omega) L_m(\omega), \quad \hbar = k_B = 1,$$

$$R_m(\omega) = 2\pi^2 n (g_N^2 \beta_N)^2 \omega (\tau_c)^{-1} [1 - \exp\{-\omega/T\}] [I(I+1) - m(m+1)] (1+d)^2,$$

$$L_m(\omega) = \delta[\omega - \omega_-(m \rightarrow m \pm 1)], \quad (4)$$

$$\omega_-(m \rightarrow m \pm 1) = \omega_0 - (1 - 3f(\alpha))^{1/2} \cos(\psi - \gamma) [C + \text{sign}\{A_1\} (A_2 S + 2Cm)],$$

$$\omega_0 = |A_1 S - g_N \beta_N H|, \quad (5)$$

где  $\eta$  — показатель преломления магнитного кристалла,  $c$  — скорость света,  $n$  — число примесей в единице объема,  $d$  — коэффициент усиления, черта над  $\delta$ -функцией означает усреднение по всем конфигурациям случайных низкосимметричных полей. После усреднения выражения (4) для

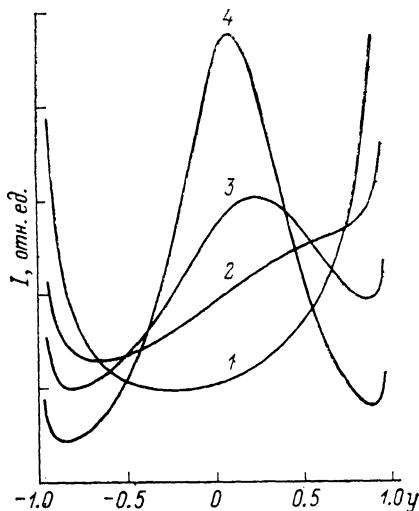
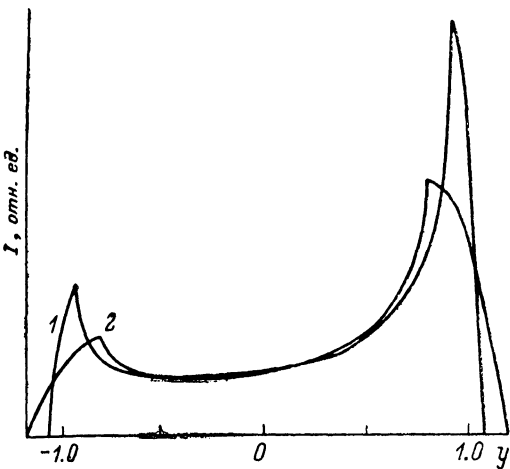


Рис. 1. Зависимость относительной интенсивности от параметра  $y$ .

$$\beta = 0.5, \quad C/A_2 S = 0.02 \quad (1), \quad 0.05 \quad (2).$$

Рис. 2. Спектральное распределение интенсивности поглощения при различных температурах (динамический эффект ЯТ).

$$\beta = 0.25. \quad 1 - 0.25, \quad 2 - 1.0, \quad 3 - 1.5, \quad 4 - 2.5.$$

$K(\omega)$  с функцией распределения лоренцевского типа  $g(\hbar, \varphi) = (2\pi)^{-1} \Gamma \hbar (\hbar^2 + \Gamma^2)^{-3/2}$  [7] получаем

$$L_m(\omega) = \pi^{-1} \Gamma (Q_m^2 - (\omega - \omega_0)^2)^{-1/2} [(\delta^2(\alpha) + \Gamma^2)^{1/2} - \delta(\alpha)(\omega - \omega_0)/Q_m]^{-1},$$

$$Q_m = (1 - 3f(\alpha))^{1/2} [C + \text{sign}\{A_1\} (A_2 S + 2Cm)], \quad \delta(\alpha) = |D(S)| (1 - 3f(\alpha))^{1/2}. \quad (6)$$

Величина  $2|Q_m|$  определяет ширину полосы поглощения. Функция  $L_m(\omega)$  является асимметричной относительно центра  $m$ -полосы. Минимум интенсивности приходится на частоту  $\omega_1$ :

$$\omega_1 = \omega_0 + Q_m [1 - (1 + 8\delta^2(\alpha))^{1/2}] (4\beta(\alpha))^{-1}, \quad \beta(\alpha) = \delta(\alpha) [\Gamma^2 + \delta^2(\alpha)]^{-1/2}. \quad (7)$$

Характер асимметрии линии ЯМР, согласно (7), зависит от отношения параметров  $\delta(\alpha)/\Gamma$ . В случае  $\delta(\alpha)/\Gamma \ll 1$  ( $\beta(\alpha) \ll 1$ ) асимметрия выражена слабо:  $\omega_1 - \omega_0 = -Q_m \beta(\alpha)$ . Это связано с тем, что различные ориентации псевдоспиновых моментов  $\hat{U}_{E\vartheta}$  и  $\hat{U}_{E\sigma}$  становятся равновероятными с точностью до членов порядка  $\delta(\alpha)/\Gamma$ .

В обратном предельном случае  $\beta(\alpha) \rightarrow 1$  средние значения операторов  $\hat{U}_{E\mu}$  почти полностью определяются направлением намагниченности. Спектральная плотность остается заметной лишь в узкой области частот  $\omega - \omega_0 - Q_m \sim Q_m (\Gamma/\delta(\alpha))^2$

$$L_m(\omega) = (2|Q_m|)^{1/2} \pi^{-1} [Q_m^2 - (\omega - \omega_0)^2]^{-1/2} \gamma [\gamma^2 + \text{sign}\{Q_m\} (\omega_0 + Q_m - \omega)]^{-1},$$

$$\gamma = \Gamma |Q_m/2|^{1/2} / \delta(\alpha). \quad (8)$$

Учет квадрупольных эффектов при  $|A_2| \gg |C|$  может оказаться существенным в области частот  $\omega - \omega_0 \pm Q_m \sim |C|$ , где функция  $L_m(\omega)$  испытывает расходимость. Характер поведения  $K(\omega)$  с учетом квадрупольных взаимодействий может быть качественно описан, если суммирование по  $m$  в выражении (4) заменить интегрированием. Характерные зависимости  $K(\omega)$  приведены на рис. 1.

При произвольных температурах поведение спектра существенно зависит от отношения времени ядерной прецессии  $\omega^{-1}$  к времени релаксации двухуровневого центра  $\tau$ . Если  $\omega\tau < 1$ , то в выражениях для частот ядерных переходов орбитальные операторы могут быть заменены их термодинамическими средними. Оценки показывают, что указанное приближение работает практически во всем температурном интервале. В результате выражение (5) для частот переходов заменяется на следующее:

$$\omega(m \rightarrow m \pm 1) = \omega_0 - Q_m \cos(\psi - \gamma) \operatorname{th}(E(S)/T), \quad (9)$$

где  $2E(M) = E_+(M) - E_-(M)$  — энергия расщепления орбитального дублета.

Для спектральной интенсивности  $L_m(\omega)$  в этом случае имеем

$$L_m(\omega) = (\pi |Q_m|)^{-1} \int_{E_0}^{\infty} dE E \Gamma [\operatorname{th}^2(E/T) - y^2]^{-1/2} [E^2 + \delta^2(\alpha) + \Gamma^2 - 2E\delta(\alpha) y \operatorname{cth}(E/T)]^{-1/2},$$

$$E_0 = T \operatorname{Arth}|y|, \quad y = (\omega - \omega_0)/Q_m. \quad (10)$$

Рассмотрим вначале поведение  $L_m(\omega)$  в области  $y$ , не включающей окрестности краев полосы поглощения, где  $|y| - 1 \ll 1$ . При низких температурах, когда  $t \ll 1$  ( $t = T(\delta^2(\alpha) + \Gamma^2)^{-1/2}$ ), основной вклад в интенсивность вносит область энергий расщеплений орбитального дублета с  $E < T$  и выражение (10) приводится к виду (6). При этом для значений  $\Gamma > \delta(\alpha)$  спектральная плотность описывается полосой с максимумами на краях и провалом в центре.

В случае температур  $t \gg 1$  основной вклад при интегрировании в (10) вносит интервал значений  $E > T$  и интенсивность поглощения описывается следующей зависимостью:

$$L_m(\omega) = \pi^{-1} |Q_m|^{-1} (1 - y^2)^{-1/2} (\Gamma/T) [1 + (1 - y^2) \{(y - \delta(\alpha)/T)^2 + (\Gamma/T)^2\}^{-1}]. \quad (11)$$

Из выражения (11) видно, что при высоких температурах спектральная плотность имеет максимум с шириной  $\Gamma/T$ , сдвинутый относительно центра полосы на величину  $y_0 = \delta(\alpha)/T$ . Переход от одного типа спектра к другому с ростом температуры совершается при  $t \sim 1$ .

В случае частот, приближающихся к краям полосы поглощения (значений  $|y| \rightarrow 1$ ), существенное отличие формы спектра от асимптотики (6) имеет место лишь для температур  $t > 1$

$$L_m(\omega) = 2^{-3/2} \cdot (\delta^2(\alpha) + \Gamma^2)^{1/2} (T |Q_m|)^{-1} (1 - y^2)^{-1/2} (\operatorname{Arth}|y|)^{-1/2}. \quad (12)$$

Видно, что в рассматриваемой области частот величина  $L_m(\omega)$  падает с ростом температуры как  $\Gamma/T$ . Характерные зависимости спектрального распределения от температуры приведены на рис. 2.

Рассмотрим теперь примеси со статическим эффектом ЯТ. Выражение для частот внутриядерных переходов на них имеет вид

$$\omega(m \rightarrow m \pm 1) = \omega_0 + Q_m (\cos \gamma \langle \hat{U}_{E\delta} \rangle + \sin \gamma \langle \hat{U}_{E\epsilon} \rangle), \quad (13)$$

$$\langle \hat{U}_{E\delta} \rangle = p \frac{z - 1}{2z + 1}, \quad z \equiv z(H) = \exp \left\{ -\frac{3H_{E\delta}}{2T} \right\} \operatorname{ch} \left( \frac{\sqrt{3} H_{E\epsilon}}{2T} \right), \quad p = \pm 1,$$

$$\langle \hat{U}_{E\epsilon} \rangle = \frac{\sqrt{3} px}{2z + 1}, \quad x \equiv x(H) = \exp \left\{ -\frac{3H_{E\delta}}{2T} \right\} \operatorname{sh} \left( \frac{\sqrt{3} H_{E\epsilon}}{2T} \right),$$

$$H_{E\delta} = h_{E\delta} + \operatorname{sign}\{D\} \delta(\alpha) \cos \gamma, \quad H_{E\epsilon} = h_{E\epsilon} + \operatorname{sign}\{D\} \delta(\alpha) \sin \gamma.$$

В результате для спектральной интенсивности  $L_m(\omega)$  имеем

$$L_m(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dH_{E\delta} dH_{E\epsilon} \tilde{g}(\mathbf{H}) \delta[\omega - \omega_0 - Q_m(\langle U_{E\delta} \rangle \cos \gamma + \langle U_{E\epsilon} \rangle \sin \gamma)], \quad (14)$$

где  $\tilde{g}(\mathbf{H}) \equiv g(h_{E\delta} = H_{E\delta} - \text{sign}\{D\} \delta(\alpha) \cos \gamma; h_{E\epsilon} = H_{E\epsilon} - \text{sign}\{D\} \delta(\alpha) \sin \gamma) -$  функция распределения двумерных низкосимметричных полей, записанная в переменных  $(H_{E\delta}, H_{E\epsilon})$ .

Ограничимся для краткости рассмотрением направлений намагниченности в плоскости (110)-типа, где  $\cos \gamma = \pm 1$ . После несложных преобразований спектральная плотность  $L_m(\omega)$  приобретает вид

$$L_m(\omega) = \frac{3}{|Q_m|(y + \bar{p})(2y - \bar{p})} G_0\left(z = \frac{y + \bar{p}}{\bar{p} - 2y}\right), \quad G_0(z) = zG(z),$$

$$G(z) = \int_{-\infty}^{\infty} dH_{E\delta} dH_{E\epsilon} \tilde{g}(\mathbf{H}) \delta\left[z - \exp\left\{-\frac{3H_{E\delta}}{2T}\right\} \text{ch}\left(\frac{\sqrt{3}H_{E\epsilon}}{2T}\right)\right],$$

$$\bar{p} = p \text{sign}\{3\alpha^2 - 1\}. \quad (15)$$

Видно, что точки  $y = \bar{p}/2$  и  $y = -\bar{p}$  определяют границы полосы поглощения частот ЯМР, а характер спектра на краях зависит от асимптотического поведения функции  $G_0(z)$  при  $z \rightarrow 0$  и  $z \rightarrow \infty$ .

Можно показать, что при низких температурах  $\rho \gg 1$  ( $\rho = 3\Gamma/2T$ ) функция  $G_0(z)$  оказывается независящей от  $z$  в широкой области изменения параметра  $z$ :  $e^{-\rho} < z < e^{\rho}$ . При этом с ростом температуры наблюдается рост  $G_0(z) \sim T/\Gamma$ . В результате для спектральной плотности  $L_m(\omega)$  получаем

$$L_m^{(a)}(\omega) = \frac{\sqrt{3}}{2\pi^{\nu}} \frac{T}{\Gamma} \frac{1}{|Q_m|} \times$$

$$\times (y + \bar{p})(2y - \bar{p})^{-1}, \quad \nu^{(a)} = 1, \quad \nu^{(b)} = 1/2, \quad (16)$$

где индексы (a) и (b) отвечают функциям распределения  $g(h_{E\delta}, h_{E\epsilon})$  лорен-

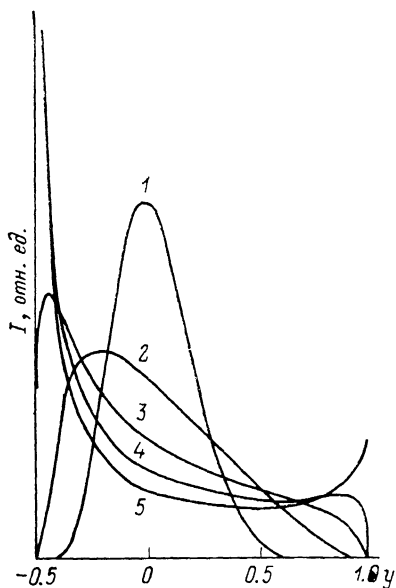


Рис. 3. Спектральное распределение интенсивности поглощения при различных температурах (статический эффект ЯТ).

$\delta(\alpha)/\Gamma = 0.25$ .  $\Gamma/T$ : 1 — 0.5, 2 — 1.0, 3 — 1.5, 4 — 2.0, 5 — 2.5.

цевского и гауссовского типов соответственно [7]. Видно, что функция  $L_m(\omega)$  характеризуется гиперболическими расходимостями у границ зоны и минимумом при  $y = -p/4$ , т. е. в центре полосы поглощения. Отметим, что в рассматриваемом случае ( $\rho \gg 1$ ) коэффициент поглощения  $K(\omega)$  оказывается температурно-независимым в широком интервале изменения параметра  $y$ .

Можно показать, что при высоких температурах ( $\rho \ll 1$ ) функция  $L_m(\omega)$  имеет резко выраженный максимум в области значений  $z \simeq 1$ , т. е. при  $y \ll 1$ . Выражение для  $L_m(\omega)$  в указанной области частот принимает следующий вид:

$$L_m^{(a)}(\omega) = (2\pi |Q_m|)^{-1} (\Gamma/T) \left[ \left( y + p \text{sign}\{D\} \frac{\delta(\alpha)}{2T} \right)^2 + \left( \frac{\Gamma^2}{2T} \right)^2 \right]^{-1}, \quad (17)$$

$$L_m^{(b)}(\omega) = (\sqrt{\pi} |Q_m|)^{-1} \left( \frac{2T}{\Gamma} \right) \exp \left\{ - \left[ y + p \text{sign}\{D\} \frac{\delta(\alpha)}{2T} \right]^2 \left( \frac{2T}{\Gamma} \right)^2 \right\}. \quad (18)$$

При промежуточных температурах, т. е.  $\rho \sim 1$ , происходит постепенная перестройка спектра от одной асимптотической формы с максимумом в центре полосы ( $\rho \ll 1$ ) к другой с экстремумами на краях ( $\rho \gg 1$ ). Более детальный анализ полученных результатов проведен в [8]. Характерные зависимости  $K(\omega)$  представлены на рис. 3.

Таким образом, в широком температурном интервале картина спектра может меняться существенным образом. Однако в целом ряде систем со структурой шпинели или граната дисперсии случайных полей составляют десятки  $\text{см}^{-1}$  и во всей области низких температур, где наблюдаются ЯМР спектры, реализуется лишь низкотемпературная асимптотика.

Отметим, что для иона  $\text{Cu}^{2+}$  ( $E$ -терм) со спином  $S=1/2$  в кубической магнетике роль анизотропии может играть орбитально модифицированное анизотропное обменное взаимодействие [9, 10]. При этом можно использовать полученные ранее результаты с точностью до замены  $D$  на параметр анизотропного обмена  $J_{\text{анис.}}$ .

## 2. Спектры ЯМР ян-теллеровских понов в позициях с тригональной симметрией

Для широкого класса кубических магнетиков локальные кристаллографические позиции ЯТ ионов характеризуются тригональной симметрией, например октапозиции кристаллов со структурой шпинели или граната. При этом в указанных структурах имеют место четыре неэквивалентные позиции с различными направлениями тригональных осей.

Дополнительные слагаемые в гамильтониане ЯТ центра, обусловленные наличием тригональной компоненты кристаллического поля, имеют следующий вид:

$$\begin{aligned}
 H_1^{\text{TP}} &= D_1 (S_{T_2z} + S_{T_2y} + S_{T_2x}) + D_2 [\langle U_{Eg} \rangle (2S_{T_2z} - S_{T_2y} - S_{T_2x}) + \\
 &+ \sqrt{3} \langle U_{Eg} \rangle (S_{T_2z} - S_{T_2y})] / 3 + D_3 \langle U_{A_2} \rangle (S_x + S_y + S_z), \quad \langle U_{A_2} \rangle = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \\
 H_2^{\text{TP}} &= A_3 [(S_x + S_y + S_z) (I_x + I_y + I_z) - (IS)] + A_5 \langle U_{A_2} \rangle (I_x + I_y + I_z) + \\
 &+ A_4 [\langle U_{Eg} \rangle (2I_{T_2z} - I_{T_2y} - I_{T_2x}) + \sqrt{3} \langle U_{Eg} \rangle (I_{T_2z} - I_{T_2y})] / 2, \\
 S_{T_2z} &= (S_x S_y + S_y S_x) / 2, \quad S_{T_2y} = (S_y S_z + S_z S_y) / 2, \quad S_{T_2x} = (S_x S_z + S_z S_x) / 2, \\
 I_{T_2z} &= (I_x S_y + I_y S_x) / 2, \quad I_{T_2y} = (I_y S_z + I_z S_y) / 2, \quad I_{T_2x} = (I_x S_z + I_z S_x) / 2. \quad (19)
 \end{aligned}$$

Выражения (19) записаны для ЯТ центров с выделенной тригональной осью [111]. Для центров с другими направлениями тригональных осей соответствующие выражения получаются очевидной сменой знаков при операторах  $S_i$  и  $I_i$  ( $i=x, y, z$ ). В гамильтониане (19) опущены слагаемые, описывающие квадрупольные взаимодействия. В дальнейшем будем предполагать также, что для ЯТ центров реализуется случай сильного эффекта ЯТ, когда параметрами  $D_3$  и  $A_5$  можно пренебречь.

Приведем соответствующее выражение для частот переходов между ядерными подуровнями ЯТ центра с локальной осью [111]

$$\begin{aligned}
 \omega &= \omega_0 + S \text{sign} \{A_1\} \{ (1 - 3f(\alpha))^{1/2} A_2 [\langle U_{Eg} \rangle \cos \gamma + \langle U_{Eg} \rangle \sin \gamma] + \\
 &+ 2A_3 F(\alpha) + A_4 \Phi(\alpha) [\langle U_{Eg} \rangle \cos \kappa + \langle U_{Eg} \rangle \sin \kappa] \}, \\
 F(\alpha) &= \alpha_x \alpha_y + \alpha_x \alpha_z + \alpha_y \alpha_z, \quad \Phi(\alpha) = [f(\alpha) - \alpha_x \alpha_y \alpha_z (\alpha_x + \alpha_y + \alpha_z)]^{1/2}, \\
 \lg \kappa &= \sqrt{3} \alpha_z (\alpha_y - \alpha_x) (2\alpha_x \alpha_y - \alpha_x \alpha_z - \alpha_y \alpha_z)^{-1}. \quad (20)
 \end{aligned}$$

Результирующая полоса поглощения ЯМР спектра представляет собой в общем случае наложение четырех полос поглощения от ЯТ центров с разными направлениями тригональных осей. Для систем с достаточно сильными случайными полями ( $\Gamma > |D|$ ) максимумы интенсивностей ЯМР

при низких температурах и произвольных направлениях намагниченности в (110)-плоскости соответствуют частотам (20) с величинами  $\langle \hat{U}_{Eg} \rangle$ , равными  $-p$  и  $+p/2$  в случае статического эффекта ЯТ и  $\langle \hat{U}_{Eg} \rangle = \pm 1$  в случае динамического эффекта ЯТ.

### 3. Сравнение с экспериментальными данными

Ограничимся рассмотрением кубических магнетиков с ЯТ ионами  $Mn^{3+}$  [1, 2]. В работе [1] измерялись зависимости амплитуды ЯМР сигналов от угла между направлением намагниченности и кристаллографическими осями при фиксированном значении частоты возбуждающих импульсов. На основе полученных результатов можно качественно объяснить наблюдаемые угловые зависимости как в статическом, так и в динамическом пределах эффекта ЯТ [8]. При этом в целом экспериментальные зависимости ближе к результатам, отвечающим статическому пределу эффекта ЯТ.

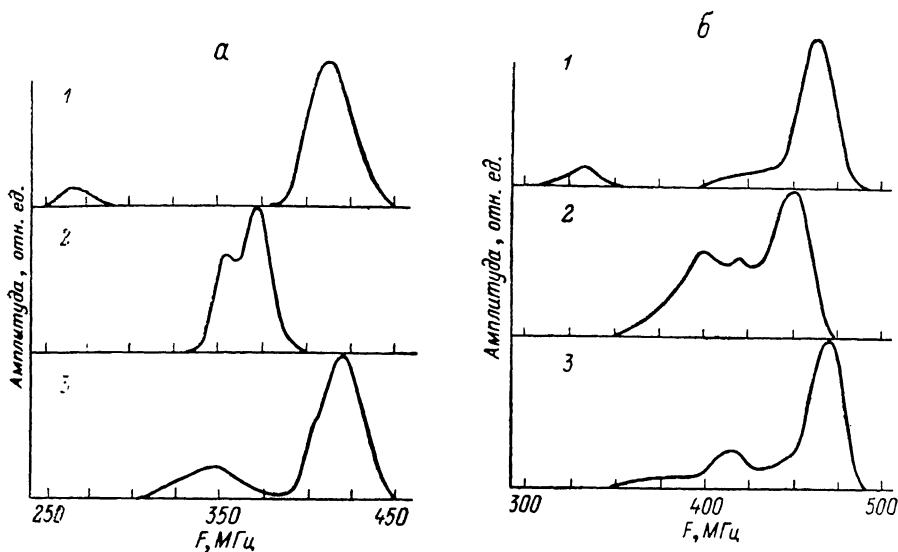


Рис. 4. Спектры ЯМР  $Mn^{3+}$  в  $MnFe_2O_4$  (а) и  $Mn_{0.82}Zn_{0.18}Fe_2O_4$  (б).

Намагниченность направлена вдоль кристаллографических осей [001], [111], [110] соответственно.

Рассмотрим теперь данные по спектрам ЯМР ионов  $Mn^{3+}$  в YIG [2] и  $Mn_{1-x}Zn_xFe_2O_4$  с  $x=0, 0.18$  (рис. 4, а, б). Качественный анализ частотных зависимостей  $K(\omega)$  указывает на то, что для иона  $Mn^{3+}$  в рассматриваемых структурах реализуется ситуация, близкая к случаю статического эффекта ЯТ. Наилучшее согласие теоретических и экспериментальных данных по частотной зависимости спектрального распределения достигается при следующих значениях параметров сверхтонкого взаимодействия (в МГц):

	$\omega_0$	$A_2$	$A_3$	$A_4$
$MnFe_2O_4$	364	49	2.3	0
$Mn_{0.82}Zn_{0.18}Fe_2O_4$	422	43	5.5	-15
YIG: $Mn^{3+}$ [2]	445	40	14.5	-18

Проведенные в модели кристаллического поля теоретические оценки параметров сверхтонкого взаимодействия  $A_i$  согласуются как по величине, так и по знаку с этими результатами. При этом учитывалось наличие низколежащего возбужденного состояния  ${}^3T_1$  ( ${}^3H$ ) иона  $Mn^{3+}$ . Показано также, что эффекты второго порядка по анизотропному сверхтонкому взаимодействию ( $\sim A_2^2/\omega_0$ ) оказываются сравнительно малыми.

Проведенное исследование показало, что для магнетиков с одним типом ЯТ ионов могут реализовываться различные формы резонансного спектра. Действительно, для ионов  $Fe^{2+}$  в тетрапозициях шпинели  $CdCr_2S_4$  [11] в спектре ядерного резонанса имеет место лишь одна линия ( $M \parallel [001]$ ). Такая картина отвечает слабым случайным полям с дисперсией  $\Gamma \ll |D|$ . В то же время низкотемпературный спектр ЯМР для рассмотренных систем  $MnFe_2O_4$ ,  $Mn_{1-x}Zn_xFe_2O_4$  и YIG с ЯТ ионами  $Mn^{3+}$  имеет структуру, характерную для сильных случайных полей ( $\Gamma \gg |D|$ ). Эти выводы о величинах дисперсии случайных полей согласуются с результатами обработки экспериментальных исследований по магнитной анизотропии указанных систем с ионами  $Mn^{3+}$  [12, 13] и  $Fe^{2+}$  [11].

#### Список литературы

- [1] Kubo T., Hirai A., Abe H. // J. Phys. Soc. Jap. 1969. V. 26. N 7. P. 1094—1109.
- [2] Krishnan R. // Proc. Int. School of Phys. «Enrico Fermi». Course LXX «Physics of Magnetic Garnets». 1978. P. 504—520.
- [3] Le Dang Khoi, Veillet P. // Rev. Sci. Instrum. 1974. V. 45. N 6. P. 759—761.
- [4] Шашкин С. Ю., Никифоров А. Е. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 1. С. 118—125.
- [5] Берсукер И. Б., Полингер В. З. Вибронные взаимодействия в молекулах и кристаллах. М.: Наука, 1983. 336 с.
- [6] Ham F. Electron paramagnetic resonance. N. Y., 1972. P. 1—119.
- [7] Ivanov M. A., Mitrofanov V. Ya., Falkovskaya L. D., Fishman A. Ya. // J. Magn. and Magn. Mater. 1983. V. 36. N 1. P. 26—38.
- [8] Иванов М. А., Митрофанов В. Я., Крашанинин В. А., Фишман А. Я. // Препринт ИМФ 3.89. 35 с.
- [9] Novak P. // Intern. J. Magn. 1972. V. 2. N 1. P. 177—181.
- [10] Falkovskaya L. D., Fishman A. Ya., Ivanov M. A., Mitrofanov V. Ya. // J. Magn. and Magn. Mater. 1988. V. 71. N 2. P. 337—354.
- [11] van Diepen A. M., van Staple R. P. // Phys. Rev. B. 1972. V. 5. N 2. P. 2462—2466.
- [12] Ivanov M. A., Mitrofanov V. Ya., Fishman A. Ya. // Phys. St. Sol. (b). 1984. V. 421. N 1. P. 547—559.
- [13] Kratochvilova E., Novak P., Veltrusky I. // J. Phys. C. 1985. V. 18. N 8. P. 1671—1676.

Институт металлургии УрО АН СССР  
Свердловск  
Дон ФТИ АН УССР  
Донецк

Поступило в Редакцию  
14 февраля 1989 г.  
В окончательной редакции  
25 июля 1989 г.