

УДК 543.422.25

© 1991

ПРОЯВЛЕНИЕ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ FeVO_3 В СИГНАЛАХ В СИЛЬНЫХ РЧ-ПОЛЯХ

*Х. Г. Богданова, В. А. Голенищев-Кутузов,
Л. И. Медведев, М. М. Шакирзянов*

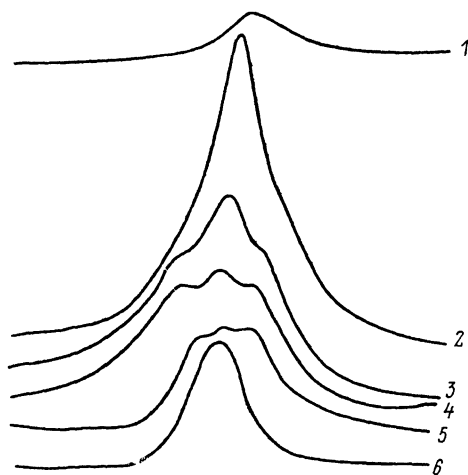
Впервые экспериментально обнаружено проявление доменной структуры бората железа в виде расщепления сигнала ЯМР на три пика поглощения в статическом магнитном поле, приложенном в плоскости базиса. Исследованы зависимость интенсивностей и изменение резонансных частот основного и боковых сигналов от статического поля. Предложено теоретическое объяснение наблюдаемых зависимостей и показано, что эти эффекты обусловлены особенностями слоистой доменной структуры и слабым ферромагнетизмом бората железа.

Настоящая работа посвящена исследованию особенностей сигналов ЯМР в антиферромагнетике FeVO_3 в сильных магнитных полях. Значительный интерес к данной проблеме обусловлен следующими обстоятельствами.

Во-первых, антиферромагнетик FeVO_3 обладает сложной доменной структурой, которая исчезает с ростом статического магнитного поля H_0 . При этом основной вклад в сигналы ЯМР в слабых статических магнитных полях вносят ядра, расположенные в доменных границах и имеющие значительно больший коэффициент усиления, чем ядра в самих доменах [1]. С увеличением H_0 происходит исчезновение доменных границ и возрастает роль ядер в доменах. Поскольку в разных доменах первоначальная ориентация сверхтонких полей различна, то очевидно, что эта сложная доменная структура должна проявиться в сигналах ЯМР по крайней мере при не очень больших значениях статического магнитного поля.

Во-вторых, хорошо известно, что сигналы ЯМР в магнитоупорядоченных веществах наблюдаются благодаря наличию сильной связи между ядерной и электронной намагниченностью, приводящей к усилению как радиочастотного поля, так и самого сигнала ЯМР. В то же время коэффициент усиления η , имеющий в антиферромагнетиках порядок 10^3-10^4 и пропорциональный отношению $\sim H_a H_D / (H_0 H_D + H_E H_a)$, быстро уменьшается с ростом H_0 (H_a — сверхтонкое поле на ядре, H_D — поле Дзялошинского, H_E — обменное поле, H_a — поле анизотропии в плоскости базиса). Эта зависимость проявляется в ряде экспериментов по исследованию магнитоупорядоченных веществ методами ЯМР [1-5]. В данной работе исследовались сигнал свободной индукции (ССИ) и его частотный спектр в зависимости от величины магнитного поля H_0 . Согласно [1], ССИ пропорционален углу отклонения вектора намагниченности от равновесного состояния, определяемого величиной переменного поля H_1 . Поскольку на ядерные спины действует не H_1 , а эффективное, усиленное поле ηH_1 , то увеличение H_0 приводит к уменьшению амплитуды ССИ. Поэтому очевидно, что для проведения исследований в сильных магнитных полях требуется увеличение интенсивности РЧ-поля накачки, необходимой для получения значительных углов отклонения. Реализация этих условий (большие переменные и постоянные магнитные поля) дала возможность, как будет показано ниже, исследовать проявление особенностей сигналов ЯМР от ядер, расположенных в доменах.

Исследование ССИ и их частотных спектров после Фурье-преобразования было выполнено на спин-системе ядер ^{57}Fe в борате железа при 77 К.



Характеристика образцов и методика измерений подробно описаны в наших предыдущих работах [4, 5]. Отметим, что измерения проводились для случая $\mathbf{H}_1 \perp \mathbf{H}_0$. При этом векторы \mathbf{H}_1 и \mathbf{H}_0 лежали в «легкой» плоскости намагничивания (111), которая представляла собой наибольшую грань

Рис. 1. Расщепление спектра ЯМР при $\Delta P = -15$ дБ (ΔP — ослабление мощности) в зависимости от статического поля.

H_0 , Э: 1 — 1000, 2 — 300, 3 — 150, 4 — 125, 5 — 75, 6 — 20.

образца, изготовленного в виде прямоугольного параллелепипеда. При рассматриваемой ориентации магнитных полей были обнаружены три сигнала поглощения: «основной» на частоте ЯМР ($\nu = 75.395$ МГц) и два «боковых» на частотах, близких к ν (рис. 1). Все три сигнала поглощения возникали во всем диапазоне интенсивности РЧ-поля $H_1 \geq H_{1\text{кр}}$, причем зависимость амплитуды «основного» сигнала от величины H_0 носит немонотонный характер (рис. 2).

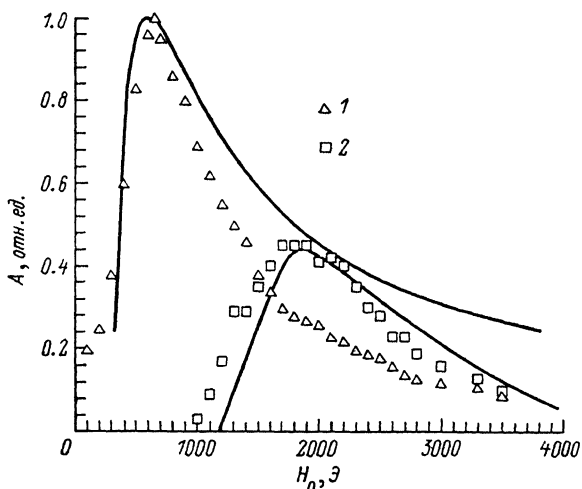


Рис. 2. Зависимость относительной интенсивности ССИ от статического поля. $\Delta P = 15$ (1) и 0 дБ (2).

Точки — эксперимент, сплошные линии соответствуют (8).

$H_{1\text{кр}}$ — величина переменного магнитного поля, при которой впервые проявляются пики поглощения, относящиеся, как будет показано ниже, к различно ориентированным доменам и соответствующая ослаблению выходной мощности передатчика ($P_{\text{max}} \approx 1$ кВт) на 39 дБ.

Установлено, что между значениями H_1 и H_0 , при которых наблюдается максимум «основного» сигнала, существует линейная зависимость, которая не экстраполируется к нулевым значениям поля H_0 (рис. 3). Ам-

плитуды «боковых» сигналов быстро спадают до нуля уже в полях ~ 200 Э (рис. 1). Частотный интервал между «боковыми» сигналами поглощения проявляет линейную зависимость от H_0 (рис. 4), а резонансная частота «основного» сигнала с ростом H_0 смещается в область меньших

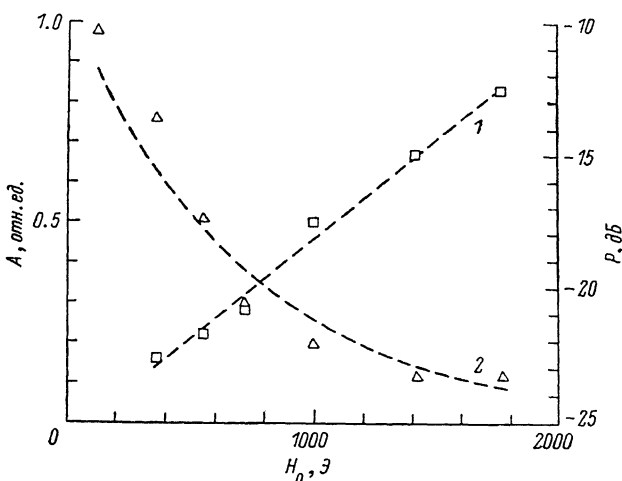


Рис. 3. Зависимости от поля H_0 амплитуды РЧ-поля H_1 , соответствующего максимальным значениям ССИ (1), и коэффициента усиления η_{\perp} (2).

частот. По максимальным значениям амплитуды «основного» сигнала при разных H_1 была исследована зависимость коэффициента усиления η_{\perp} от поля H_0 (рис. 3). Ширина линии $\Delta\nu$ «основного» сигнала, полученная из спектрального распределения, составила $\sim 13 \div 14$ кГц, в то время как при $H_0=0$ и при тех же значениях мощности РЧ-поля $\Delta\nu \sim 3 \div 4$ кГц [5].

Следует отметить, что сигналы ЯМР от ядерных спинов ^{57}Fe наблюдаются на фоне сильных магнитоупругих колебаний. Интенсивность магнитоупругих колебаний убывает с увеличением статического поля H_0 , что дает возможность выделить чистый сигнал ЯМР. Учет влияния силь-

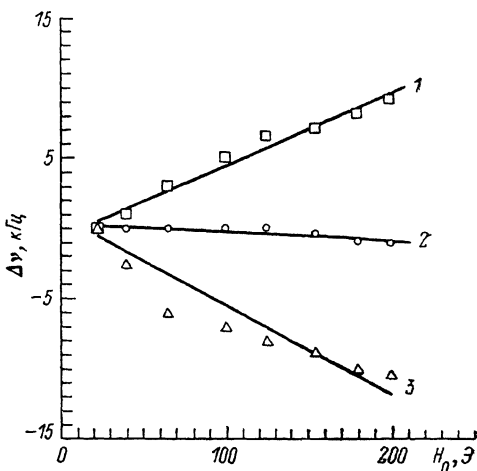


Рис. 4. Зависимость изменения частоты боковых (1, 3) и центральной (2) линий поглощения от H_0 .

Сплошные линии соответствуют формулам (4).

ного магнитоупругого взаимодействия на сигнал ЯМР в изучаемом кристалле является предметом наших дальнейших исследований.

2. Интерпретация результатов

Наблюдаемое расщепление сигнала ЯМР ядер ^{57}Fe при включении статического магнитного поля H_0 , очевидно, обусловлено своеобразной сложной доменной структурой кристалла бората железа. В то же время усиление «основного» сигнала поглощения и ослабление (вплоть до полного исчезновения) боковых сигналов с ростом H_0 связаны, на наш взгляд, прежде всего со слабым ферромагнетизмом FeVO_3 и динамикой процесса перемангничивания образца при монодоменизации. Модель доменной струк-

туры брата железа, широко применяемая при объяснении экспериментов и проведении теоретических расчетов [6-9], была предложена в работах [10, 11]. Доменная структура в FeVO_3 , согласно [10, 11], представляет собой распределенные по толщине слои-домены с различным направлением намагниченности в базисной плоскости. В свою очередь в каждом слое имеются 180° домены, которые разделены границами Нееля S_\perp , проявляющими значительную подвижность в полях уже порядка 1 Э , наложенных в плоскости базиса [9]. Границы между слоями представляют собой при 77 К 120° границы Блоха S_\parallel [11]. Для описания перехода образца в однодоменное состояние можно воспользоваться моделью формирования доменной структуры при изменении H_0 от $H_{\text{нас}}$ до нуля, предложенной в [9] ($H_{\text{нас}}$ — поле насыщения).

Как известно, брат железа является слабым ферромагнетиком и характеризуется отличными от нуля вектором антиферромагнетизма $\mathbf{L} = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2$ и суммарной намагниченностью $\mathbf{M} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2$. Согласно модели формирования доменной структуры [9], можно считать, что при наложении \mathbf{H}_0 в «легкой» плоскости (111) в первую очередь исчезают доменные границы типа Нееля S_\perp в слоях-доменах. При этом в доменах, в которых вектор \mathbf{M} составляет острый угол с направлением \mathbf{H}_0 , будет происходить поворот \mathbf{M} по направлению к \mathbf{H}_0 . Домены с противоположным направлением \mathbf{M} исчезают благодаря смещению границ. Дальнейший рост \mathbf{H}_0 приводит из-за вращения \mathbf{M} до состояния $\mathbf{M} \parallel \mathbf{H}_0$ во всех слоях-доменах к исчезновению границ Блоха между слоями [9, 10, 12].

Положение вектора \mathbf{L} в отдельных слоях-доменах вследствие его выхода из плоскости базиса, обусловленного энергией магнитной анизотропии 4-го порядка

$$F_{\text{анн}} \propto (1/2) c \{ (L_x + iL_y)^3 + (L_x - iL_y)^3 \} L_z, \quad (1)$$

определяется при $T = 77 \text{ К}$ (ось $z \parallel [111]$) углами в сферической системе координат

$$\theta = \frac{\pi}{2} + c \frac{\cos 3\varphi}{b - 6e}, \quad \varphi = \frac{\pi}{3} n, \quad n = 0, 1, 2, \dots, \quad (2)$$

где b, c, e — константы магнитной анизотропии 2-го, 4-го и 6-го порядков соответственно [8]. (Угол φ отсчитывается от оси $x \parallel \mathbf{e}_2$ в «легкой» плоскости). Причем вектор \mathbf{L} перпендикулярен другой оси 2-го порядка, а результирующая намагниченность направлена вдоль этой оси [7, 8]. Взаимная ориентация векторов в разных слоях-доменах обусловлена, очевидно, сильным эффективным магнитоупругим полем, связанным со спонтанными деформациями и играющим существенную роль в формировании доменной структуры в антиферромагнетиках такого типа [10, 13]. Таким образом, магнитную структуру слоев-доменов и однодоменного образца в базисной плоскости схематично можно представить в виде (рис. 5, а, б). На этом рисунке плоскость XY представляет собой плоскость базиса (111), $\mathbf{M}_1^{(k)}, \mathbf{M}_2^{(k)}$ — намагниченности подрешеток в слоях-доменах вида ($k=1, 2, 3$). Здесь для простоты рассматривается случай, когда $\mathbf{H}_0 \parallel x \parallel \mathbf{e}_2$. В этом случае $\mathbf{M}^{(1)} \parallel \mathbf{H}_0$, а угол между $\mathbf{M}^{(2)}, \mathbf{M}^{(3)}$ и \mathbf{H}_0 равен $\alpha < \pi/2$; $\alpha \rightarrow 0$ при увеличении H_0 . Угол скоса φ_\perp (рис. 5, б) определяется выражением [12]

$$\sin \varphi_\perp \approx \varphi_\perp \approx (H_0 + H_D)/H_E. \quad (3)$$

В эксперименте хорошо удовлетворяется условие $H_0 \ll H_D \ll H_E$, поскольку в нашем образце $H_D \approx 85 \pm 7$, $H_E \approx 5.2 \cdot 10^3$, $H_0 \leq 10 \text{ кЭ}$ [4]. Частоты ЯМР для ядер магнитных подрешеток в различных слоях-доменах при $H_E < H_0$ (H_E — поле, при котором исчезают границы Нееля) определяются выражениями

$$\begin{aligned} \omega_1^{(1)} &= \omega_n - \gamma_n H_0 \sin \varphi_\perp, & \omega_2^{(1)} &= \omega_n - \gamma_n H_0 \sin \varphi_\perp, & \omega_1^{(2)} &= \omega_n + \gamma_n H_0 \sin (\alpha - \varphi_\perp), \\ \omega_2^{(2)} &= \omega_n - \gamma_n H_0 \sin (\alpha + \varphi_\perp), & \omega_1^{(3)} &= \omega_n - \gamma_n H_0 \sin (\alpha + \varphi_\perp), \end{aligned}$$

$$\omega_2^{(3)} = \omega_n + \gamma_n H_0 \sin(\alpha - \varphi_{\perp}), \quad (4)$$

где $\omega_{1n} = \omega_{2n} = \omega_n$ — частоты ЯМР в сверхтонком поле H_n .

Таким образом, согласно выражениям (4), в двухподрешеточном антиферромагнетике со слабым ферромагнетизмом FeVO_3 в статическом магнитном поле, приложенном в плоскости базиса, должны наблюдаться «основной» и два «боковых» сигнала ЯМР от ядер в доменах. Эти сигналы будут, очевидно, проявляться в виде расщепления сигнала ЯМР от всех ядер, поскольку с разрушением доменных границ исчезнут вклады от ядер в границах, имеющих значительно больший коэффициент усиления. Графики зависимости частот $\omega_1^{(1)} = \omega_2^{(1)} = \omega_0$, $\omega_1^{(2)} = \omega_2^{(3)} = \omega_+$, $\omega_1^{(3)} = \omega_2^{(2)} = \omega_-$, построенные согласно (4) при $\gamma_n = 0.14 \cdot 10^3$ Гц/Э, даны на рис. 4. При построении графиков мы предполагали, что угол α в полях до 200 Э меняется очень слабо ввиду сильного эффективного магнитоупругого поля порядка $\sim \sqrt{H_E H_a}$ [13].

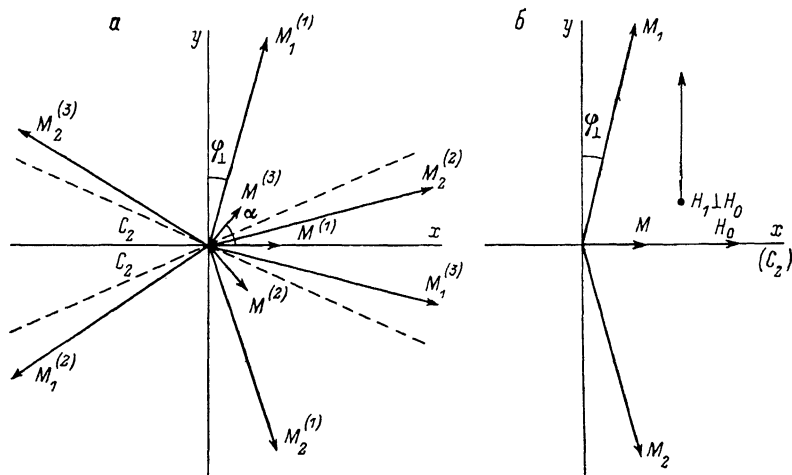


Рис. 5. Магнитная структура слоев-доменов (а) и однодоменного образца (б) бората железа.

Как уже отмечалось, угол α с ростом H_0 стремится к нулю вследствие поворота $\mathbf{M}^{(2, 3)}$ по направлению к \mathbf{H}_0 . Таким образом, при $H_0 > \sqrt{H_E H_a}$ будет наблюдаться лишь «основной» сигнал на частоте

$$\omega_0 = \omega_n - \gamma_n H_0 \sin \varphi_{\perp}. \quad (5)$$

Частота «основного» сигнала также должна, согласно (5), уменьшаться с ростом H_0 , что и наблюдается в эксперименте. Заметим, что появление и увеличение интенсивности «основного» сигнала на частоте ω_0 возможны лишь при перпендикулярной ориентации РЧ-поля \mathbf{H}_1 к \mathbf{H}_0 . Это связано с тем, что коэффициент усиления для ядер в доменах зависит от ориентации РЧ-поля по отношению к статическому. Согласно [9], коэффициенты для двух ориентаций $\mathbf{H}_1 \parallel \mathbf{H}_0$ и $\mathbf{H}_1 \perp \mathbf{H}_0$ соответственно равны

$$\eta_{\parallel} = \left| \frac{H_n \cos \xi}{H_0 \sin \xi + H_a \cos 6\beta} \right|, \quad \mathbf{H}_1 \parallel \mathbf{H}_0;$$

$$\eta_{\perp} = \left| \frac{H_n \sin \xi}{H_0 \sin \xi + H_a \cos 6\beta} \right|, \quad \mathbf{H}_1 \perp \mathbf{H}_0, \quad (6)$$

где ξ — угол между направлением \mathbf{H}_0 и направлением намагниченности в подрешетке, β — угол между «легкой» осью и направлением намагниченности в подрешетке. Поскольку для «основного» сигнала на частоте ω_0 $\xi = \pi/2 - \varphi_{\perp}$, а угол φ_{\perp} имеет порядок $\sim 1^\circ$, то величина $\cos \xi = \sin \varphi_{\perp} \sim \varphi_{\perp}$ очень мала и $\eta_{\parallel} \approx 0$.

Исследуем зависимость ССИ на частоте ω от величин H_0 при $H_{1\perp} \perp H_0$. Амплитуда ССИ может быть вычислена из общего выражения [14]

$$m = \eta_{\perp} m_0 G(\omega) \sin \rho, \quad \rho = \gamma_{\perp} H_{1\perp} \tau_{\perp}, \quad (7)$$

где m_0 — равновесная ядерная намагниченность, τ_{\perp} — длительность импульса, $G(\omega)$ — функция распределения спинов по частотам. В выражении (7) величина $H_{1\perp} = H_1 \sin \varphi_{\perp}$ представляет собой проекцию РЧ-поля на плоскость, перпендикулярную направлению суммарного поля $H_0 + H_{\perp}$, и определяет величину угла отклонения ρ ядерной намагниченности m от положения равновесия под действием РЧ-импульса. Поскольку в эксперименте ось катушки параллельна оси y , то величина регистрируемого сигнала определяется y -компонентой m

$$m_y = m \sin \varphi_{\perp}.$$

С учетом формул (3), (6) при $H_0 \ll H_D$ выражение для m_y с большой точностью можно записать в виде

$$m_y \simeq m_0 \frac{H_{\perp} H_D^2}{H_E (H_E H_{\alpha} + H_0 H_D)} G(\omega) \sin \gamma_{\perp} H_1 \tau_{\perp} \frac{H_{\perp} H_D^2}{H_E (H_E H_{\alpha} + H_0 H_D)}. \quad (8)$$

На рис. 2 приведен график полевой зависимости относительной интенсивности ССИ (A), построенной согласно (8) по экспериментальному значению интенсивности в точке максимума. При ослаблении мощности РЧ-поля на 15 дБ наибольшее значение сигнала наблюдается в статическом поле, равном приблизительно 700 Э. Как видно из этого рисунка, кривая $A(H_0)$ качественно согласуется с экспериментально полученной зависимостью. Для получения хорошего согласия с экспериментальными данными, на наш взгляд, во-первых, необходимо ввести функцию распределения коэффициента усиления по образцу и, во-вторых, учесть сильное влияние магнитоупругого взаимодействия. Однако, как уже указывалось выше, подробное исследование поведения коэффициента усиления с учетом всех фактов, приводящих к его изменению, является целью нашей дальнейшей работы. Поэтому здесь мы ограничимся приближением, предполагая, что коэффициент усиления постоянен по образцу.

Угол отклонения ρ от положения равновесия сильно зависит от коэффициента усиления $\eta_{\perp}(H_0)$, который быстро уменьшается с ростом H_0 . Поэтому для наблюдения сигнала ЯМР в сильном статическом поле требуются РЧ-поля большой мощности, хотя сами сигналы, очевидно, существуют и при малых H_1 . Следует отметить, что в формировании «основного» сигнала ЯМР в сильных полях $H_0 \geq \sqrt{H_E H_{\alpha}}$ принимают участие практически все спины образца и, следовательно, существенно расширяется диапазон разброса сверхтонкого поля на ядрах ΔH_{\perp} . Этим, очевидно, и объясняется значительное уширение линии ЯМР в сильных статических полях по сравнению с шириной линии при $H_0 = 0$ и малых H_1 [5].

В заключение отметим, что полученные в настоящей работе результаты по ЯМР подтверждают модель доменной структуры бората железа и позволяют надеяться, что предложенная экспериментальная методика, основанная на применении сильных РЧ-полей, может быть использована при изучении доменной структуры магнитоупорядоченных веществ.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Туров Е. А., Петров М. П. Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках. М.: Наука, 1969. 260 с.
- [2] Буньков Ю. М., Пунккинен М., Юлинен Е. Е. // ЖЭТФ. 1978. Т. 74. № 3. С. 1170—1176.
- [3] Залесский А. В., Желудев И. С., Воскоян Р. А. // ЖЭТФ. 1970. Т. 59. № 3. С. 673—681.
- [4] Багаутдинов Р. А., Богданова Х. Г., Голенищев-Кутузов В. А., Еникеева Г. Р., Медведев Л. И. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 3. С. 924—926.

- [5] Богданова Х. Г., Голенищев-Кутузов В. А., Медведев Л. И., Куркин М. И., Туров Е. А. // ЖЭТФ. 1989. Т. 95. № 2. С. 613—620.
- [6] Дзялошинский И. Е. // ЖЭТФ. 1957. Т. 32. № 5. С. 1547—1562.
- [7] Дорошев В. Д., Крыгин И. М., Лукин С. Н., Молчанов А. Н., Прохоров А. Д., Руденко В. В., Селезнев В. Н. // Письма в ЖЭТФ. 1970. Т. 29. № 5. С. 286—290.
- [8] Соболева Т. К., Стефановский Е. П. // ФНТ. 1980. Т. 6. № 10. С. 1314—1319.
- [9] Саланский Н. М., Глозман Е. А., Селезнев В. Н. // ЖЭТФ. 1975. Т. 68. № 4. С. 1413—1417.
- [10] Lacklison D. E., Chadwick J., Page J. L. // J. Phys. 1972. V. D5. N 1. P. 810—816.
- [11] Naisma J., Stacy W. T. // J. Appl. Phys. 1973. V. 44. N 7. P. 3367—3374.
- [12] Гуревич А. Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. М.: Наука, 1973. 591 с.
- [13] Туров Е. А., Шавров В. Г. // УФН. 1983. Т. 140. № 3. С. 429—462.
- [14] Иванов С. В., Куркин М. И. // Динамические и кинетические свойства магнетиков. М.: Наука, 1986. С. 197—222.

Казанский физико-технический институт
АН СССР

Поступило в Редакцию
16 мая 1990 г.