

УДК 537.611

## ОСОБЕННОСТИ МНОГОКРАТНОГО СПИНОВОГО ЭХА В НЕОДНОРОДНЫХ МАГНЕТИКАХ

*В. О. Голуб, В. В. Котов, А. Н. Погорелький, Ю. А. Подъяельц*

Исследованы дополнительные сигналы спинового эха от квадрупольных ядер с  $I=7/2$  (ядра  $\text{Co}^{59}$  в пленках  $\text{Co}$ ,  $\text{Fe-Co}$ ). Показано, что временная зависимость амплитуды дополнительных эхо-сигналов, возникающих в моменты времени  $2n\tau$ , отражает неоднородность квадрупольного взаимодействия.

Известно, что при воздействии двух радиочастотных импульсов на ядерную спиновую систему магнитоупорядоченного вещества возможно индуцирование, помимо основного сигнала спинового эха, дополнительных сигналов. Подробное рассмотрение данного явления для двухуровневой системы дано в [1]. Дополнительные сигналы эха в этой работе объясняются нелинейностью системы порядка  $(2n+1)$  (где  $n$  — порядковый номер эхо-сигнала после возбуждающих импульсов). В дальнейшем они будут именоваться вторичными.

Квантовомеханическому рассмотрению ядерного спинового эха в многоуровневой системе с учетом квадрупольного взаимодействия посвящен ряд работ [2-6]. В [2, 3] рассматривался ансамбль спинов, подверженных однородному зеемановскому взаимодействию  $\Omega$  и неоднородному квадрупольному  $Q$ . Неоднородность последнего определялась как величиной градиентов электрического поля на ядрах, так и разбросом направлений главных осей их тензоров относительно направления внешнего поля, причем квадрупольное взаимодействие рассматривалось как возмущение. Было показано, что при воздействии на ансамбль спинов ( $I=5/2$ ) двух радиочастотных импульсов с временным интервалом  $\tau$  система откликается тремя «разрешенными» эхо-сигналами в моменты времени  $1/2\tau$ ,  $\tau$ ,  $2\tau$ , соответствующими разрешенным переходам  $\Delta m = \pm 1$ , и двумя «запрещенными» в моменты времени  $3/2\tau$ ,  $3\tau$  для  $\Delta m \neq \pm 1$ . Общее количество сигналов не превышает  $2I$ .

В работе [4] рассматривается другой предельный случай — однородного квадрупольного и неоднородного зеемановского взаимодействия. При этом сигналы эха должны наблюдаться в моменты времени, кратные расстоянию между возбуждающими импульсами, а их количество также не превышает  $2I$ . Характерно, что амплитуды эхо-сигналов испытывают осцилляции при изменении интервала между радиочастотными импульсами. Частота осцилляций пропорциональна величине квадрупольного взаимодействия.

В [5, 6] был рассмотрен наиболее общий случай, когда неоднородны и зеемановское, и квадрупольное взаимодействия. Согласно [5], набег временной фазы после действия первого и второго возбуждающих импульсов

$$\Phi = \omega_{m'm'}\tau + \omega_{m+1, m}t, \quad (1)$$

$m, m', m''$  — магнитные квантовые числа;  $\tau$  — интервал между возбуждающими импульсами;  $t$  — время от момента выключения второго импульса;  $\omega_{ij} = E_i - E_j$ , ( $E_k$  — энергия  $k$ -го уровня),

$$\omega_{m'm''} = (m' - m'') \Omega + (m''^2 - m'^2) Q, \quad (2)$$

$$\omega_{m+1, m} = \Omega - (2m + 1) Q.$$

Предельные случаи: 1)  $Q = \text{const}$  [4]. Учитывая в уравнении (2) неоднородную добавку  $\Omega \rightarrow \Omega + \delta\Omega$ , получим следующее условие для формирования спинового эха:

$$t = (m'' - m') \tau, \quad m'' > m'. \quad (3)$$

2)  $\Omega = \text{const}$ ,  $Q \rightarrow Q + \delta Q$ . Следовательно,

$$t = (m''^2 - m'^2) / (2m + 1) \quad (4)$$

— условие, полученное в [2, 3]. Если обе величины  $\Omega$  и  $Q$  существенно неоднородны, то, полагая  $Q \rightarrow Q + \delta Q$ ,  $\Omega \rightarrow \Omega + \delta\Omega$  и считая  $\delta\Omega$  и  $\delta Q$  независимыми, получаем

$$t = (m'' - m') \tau, \quad 2m + 1 = m'' + m', \quad (5a), (5b)$$

т. е. разность  $m'' - m'$  может принимать только нечетные значения (в серии эхо-сигналов будут отсутствовать четные эхо). Это наблюдалось нами ранее [7].

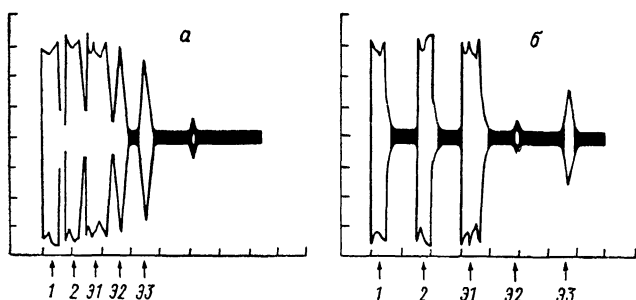


Рис. 1. Осциллограммы сигналов кратного эха при интервале между возбуждающими импульсами  $\tau = 4$  (а) и 8 мкс (б) в пленках кобальта.

Частота заполнения радиочастотных импульсов  $f_{PC} = 219$  МГц,  $T = 300$  К,  $t_1 = 1.0$ ,  $t_2 = 0.6$  мкс. 1, 2 — возбуждающие импульсы (их интенсивности сильно уменьшены); Э<sub>n</sub> — сигнал эха в момент времени  $n\tau$ .

В эксперименте с реальными магнетиками трудно реализовать только условия (5а), (5б); почти всегда присутствуют «остаточные» нечетные эхо, обусловленные механизмом, описанным в [1]. По этой же причине количество дополнительных эхо-сигналов может значительно превышать  $2I$  [7-9]. Кроме того, возможен случай, когда  $\tau \leq 2\pi/\delta Q$  или  $\tau \leq 2\pi/\delta\Omega$ , т. е. условия (5а), (5б) не работают (ядерные спины не успевают достаточно расфазироваться). Ясно, что тогда также возможно появление «запрещенных» эхо-сигналов.

Экспериментально наиболее удобно исследовать вышеуказанные особенности многократного эха по спаду соответствующих сигналов при изменении расстояния между импульсами.

В качестве основного объекта исследования были выбраны пленки чистого кобальта, содержащие гексагональную (ГПУ) и кубическую (ГЦК) фазы, а также пленки Fe—Co. Спиновое эхо наблюдалось на ядрах  $\text{Co}^{59}$  в диапазоне температур от 4.2 до 300 К. Исследовались зависимости амплитуды второго и третьего эхо-сигналов от временного интервала между возбуждающими импульсами (рис. 1). Длительности импульсов выбирались из условия  $t_1 > t_2$  [6] для наблюдения сигналов кратного эха. Все экспериментальные результаты получены при возможно минимальных частотах повторения радиочастотных импульсов (включая и разовый запуск): за время между двойками импульсов ядерная система полностью релаксировала к равновесному состоянию.

На рис. 2 приведены зависимости амплитуд эхо-сигналов, возникающих в моменты времени  $t=2\tau$  и  $t=3\tau$  в пленках кобальта (ГПУ-фаза) при различных температурах, от временного интервала между возбуждающими импульсами. Видно, что если характерное время спада для третьего эха ( $t=3\tau$ ) увеличивается с уменьшением температуры обычным образом, то зависимость интенсивности второго эха ( $t=2\tau$ ) как при 4.2, так и при 77 К состоит из двух частей: участок быстрого спада при малом временном интервале между возбуждающими импульсами  $Ia$  и участок медленного спада  $Ib$ . Характерное время спада на участке  $Ia$  в пределах ошибки измерений не зависит от температуры и, как видно из рис. 1, имеет меньшую величину, чем характерное время для третьего эха. Участок  $Ib$  более пологий, а зависимость времени спада от температуры такая же, как и для третьего эха.

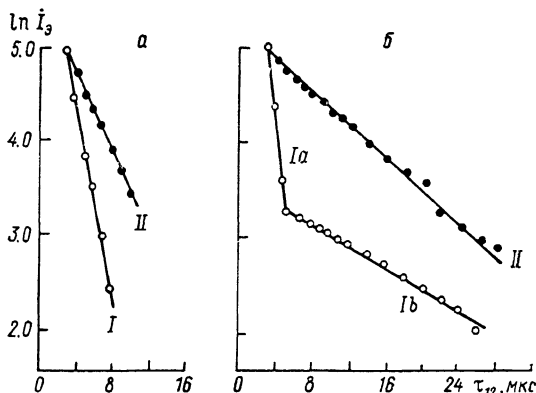


Рис. 2. Зависимость амплитуды второго  $t=2\tau$  ( $I$ ) и третьего  $t=3\tau$  ( $II$ ) эхо-сигналов от временного интервала между возбуждающими импульсами на ядрах  $Co^{59}$  в пленках кобальта при 300 (а) и 77 К (б).

$f_{pч} = 219$  МГц,  $t_1 = 0.8$ ,  $t_2 = 0.6$  мкс.

При комнатной температуре, когда интенсивность обычного эха сравнительно невелика, наблюдается лишь участок  $Ia$  (рис. 2, а). По мере понижения температуры и с ростом амплитуды обычного эха появляется второй участок (рис. 2, б), и при температуре жидкого гелия он играет основную роль в формировании второго эхо-сигнала.

Аналогичные результаты получены и для ГЦК-фазы кобальта, а также для пленок Fe—Co.

Проанализируем механизм формирования эхо-сигнала в момент времени  $2\tau$  в рамках теории [5] для случая неоднородных  $\Omega$  и  $Q$ .

Пусть условие (5б) не выполняется, т. е.  $m'' + m' \neq 2m + 1$ . Для возникновения эхо-сигнала в момент времени  $t=2\tau$  необходимо, чтобы  $m'' - m' = 2$  или  $(m''^2 - m'^2)/(2m + 1) = 2$ . Допустим  $m'' - m' = 2$ . Тогда, согласно (1), (2),

$$\Phi = 2(m'' - m' - 2m - 1)Q\tau.$$

Полагая  $Q \rightarrow Q + \delta Q$ ,

$$\delta\Phi_Q = 2(m'' - m' - 2m - 1)\delta Q\tau.$$

Сигнал эха будет наблюдаться, если  $|\delta\Phi| \leq 2\pi$ , т. е.

$$|2(m'' - m' - 2m - 1)\delta Q\tau| \leq 2\pi. \quad (6)$$

Аналогичное рассуждение можно провести и для  $(m''^2 - m'^2)/(2m + 1) = 2$

$$\Phi = (m' - m'' + 2)\Omega\tau.$$

Полагая  $\Omega \rightarrow \Omega + \delta\Omega$ ,

$$\delta\Phi_\Omega = (m' - m'' + 2)\delta\Omega\tau, \quad |(m' - m'' + 2)\delta\Omega\tau| \leq 2\pi. \quad (7)$$

Подобные результаты можно получить и для других эхо-сигналов, формирующихся в моменты времени  $2n\tau$  ( $n \leq I$ ). Если  $\delta Q \ll \delta\Omega$  (что имеет место в наших экспериментах), то основной формулой для оценки зависимости интенсивности второго эхо-сигнала от временного интервала между возбуждающими импульсами является (6). Характерное время спада сигнала эха  $T_{3Q} \sim 1/\delta Q$ ;  $\delta Q$  слабо зависит от температуры и, таким образом, можно утверждать, что участок  $Ia$  на экспериментальной кривой описывается вышеприведенным механизмом. Следует отметить, что для магнетиков с  $1/\delta Q > t_1 + t_2$  возможно появление сигналов эха в моменты времени

$$t = \frac{m''^2 - m'^2}{2m + 1} \tau \neq n\tau.$$

Пусть  $a = (m''^2 - m'^2)/(2m + 1) \neq n$ , тогда

$$\delta\Phi = (m' - m'' + a) \delta\Omega\tau.$$

Сигнал этого эха наблюдается, если

$$|(m' - m'' + a) \delta\Omega\tau|$$

Что касается участка  $Ib$ , то, исходя из данных [8] и полученных в этой работе зависимостей интенсивности второго эхо-сигнала от временного интервала между возбуждающими импульсами, объясняется он как обычное вторичное эхо, связанное с сильной нелинейностью системы.

Объединив теории вторичного [1] и кратного [5] эха, нетрудно объяснить и тот факт, что количество дополнительных эхо-сигналов может значительно превосходить  $2I$ .

В заключение следует сказать, что указанное явление позволяет определить квадратурное уширение спектра и в том случае, когда оно «растворено» в гораздо более уширенном спектре ЯМР из-за разброса локальных полей на ядрах. В сочетании с условиями подавления четных эхо-сигналов, определенных в [7], рассмотренное явление позволяет получить максимально полную информацию о градиентах электрических полей на ядрах, обусловленных электронной или кристаллической структурой, и, возможно, даже разделить их для описанного класса объектов.

#### С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Korpel A., Chatterjee M. // Proc. IEEE. 1981. V. 69. N 2. P. 1539—1556.
- [2] Solomon I. // Phys. Rev. 1958. V. 110. N 2. P. 61—65.
- [3] Абрагам А. // Ядерный магнетизм. М.: ИЛ, 1963. Гл. 7.
- [4] Abe H., Yasuoka H., Hirai A. // J. Phys. Soc. Jap. 1966. V. 21. N 1. P. 77—89.
- [5] Цифринович В. И. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 7. С. 208—212.
- [6] Абеяшев Г. Н., Бержанский В. Н., Сергеев Н. А., Федотов Ю. В. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 1. С. 227—237.
- [7] Погорелый А. Н., Котов В. В. // ФТТ. 1974. Т. 16. № 2. С. 406—409.
- [8] Мамниашвили Г. И., Чекмарев В. П. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 10. С. 2984—2988.
- [9] Searle C. W., Davis J., Hirai A., Fukuda K. // Phys. Rev. Lett. 1971. V. 27. N 20. P. 1380—1383.

Институт металлофизики АН УССР  
Киев

Поступило в Редакцию  
7 апреля 1989 г.