

УДК 543.422.25

©1994

ВЛИЯНИЕ НАВЕДЕННОЙ МАГНИТОУПРУГОЙ АНИЗОТРОПИИ НА СИГНАЛ ЯМР В FeVO_3

*Х.Г.Богданова, В.А.Голенищев-Кутузов, М.И.Куркин, И.Р.Низамиев,
А.П.Танкеев, М.М.Шахирзянов*

В FeVO_3 обнаружена необычная зависимость интенсивности сигнала ядерной магнитной индукции I_n от величины постоянного магнитного поля H : вместо ожидаемой осциллирующей зависимости кривая $I_n(H)$ имела вид сигнала дисперсии. Предложена модель сглаживания осцилляций $I_n(H)$ при малых H , основанная на существовании наведенной магнитоупругой анизотропии в базисной плоскости кристалла FeVO_3 , которая обеспечивает необходимую неоднородность магнитной восприимчивости в образце. Одновременно модель позволяет объяснить зависимость основных характеристик кривой $I_n(H)$ (смещение точек максимума и минимума, отношение высоты максимума к глубине минимума) от амплитуды переменного поля $h(t)$.

Наиболее широко ядерный магнитный резонанс (ЯМР) применяется для изучения структуры и электронных свойств слабомагнитных (пара- и диамагнитных) веществ. Возможность применения ЯМР для изучения сильномагнитных (ферро-, ферри- и антиферромагнитных) веществ (магнетиков) оказалась сильно ограниченной из-за сложной связи характеристик сигналов ЯМР с параметрами магнетиков. По этой причине ЯМР в магнетиках чаще всего исследуется как самостоятельное физическое явление. В то же время имеется немало примеров успешного применения ЯМР для изучения различных свойств магнитных материалов (ориентационных фазовых переходов [1], структуры доменных границ [2], структуры и фазового состава сплава Fe-Co-Cr [3-5] и т.д.).

Оба этих направления нашли свое отражение в исследованиях ЯМР в антиферромагнитном соединении FeVO_3 . В частности, в [6-10] были обнаружены интересные особенности ЯМР в FeVO_3 . Некоторые из них стали использоваться для изучения магнитных и упругих свойств бората железа. Например, слабое ($\Delta\nu_n \approx 20$ kHz) расщепление в спектре ЯМР FeVO_3 , обнаруженное в [9], удалось связать с искажениями магнитной структуры, возникающими при вращении вектора антиферромагнетизма в базисной плоскости [11]. Эти искажения, как и слабый ферромагнетизм [12], являются следствием кристаллографической симметрии. Их обнаружение в результате целенаправленного поиска хорошо демонстрирует возможности методов ЯМР при изучении магнитной структуры магнетиков.

Интересные особенности в динамике ядерной спин-системы обнаружены также и методом ядерного магнитоакустического резонанса в FeVO_3 [7,10]. Как было показано в [10], акустические колебания могут не только сами возбуждать ядерные спины, но и создавать дополнительный канал возбуждения обычных сигналов ЯМР переменным магнитным полем. Это позволяет использовать методы ЯМР для изучения магнитоупругих явлений в магнетиках. В частности, с помощью ЯМР было обнаружено явление усиления колебаний электронной намагниченности за счет резонансного взаимодействия со стоячими акустическими волнами [10,13]. Одним из проявлений такого усиления является возбуждение коротким импульсом сигнала свободной индукции с аномальным значением фазы [13]. Этот сигнал интересен тем, что он позволяет надежно детектировать магнитоупругие волны, возбуждаемые бесконтактным способом переменным магнитным полем [14].

Данная работа посвящена исследованиям сигналов ЯМР для изучения наведенной магнитоупругой анизотропии в FeVO_3 , сильное проявление которой обусловлено следующими особенностями бората железа: во-первых, значительной величиной константы магнитоупругой связи ($B_{15} \simeq 3.69 \cdot 10^7 \text{ J/m}^3$), связывающей поле наведенной анизотропии H_A^{me} с упругими деформациями $u_{\alpha\beta}$; во-вторых, характерным для антиферромагнетиков эффектом обменного усиления [15], благодаря которому эта анизотропия проявляется в магнитных полях $H \simeq (H_E H_A^{me})^{1/2} \gg H_A^{me}$ ($H_E \simeq 3 \cdot 10^6 \text{ Oe}$ — обменное поле в FeVO_3). Наконец, в кристаллах FeVO_3 , относящихся к легкоплоскостным антиферромагнетикам, наведенная магнитоупругая анизотропия проявляется на фоне очень малой кристаллографической анизотропии.

Для изучения полей H_A^{me} в работе предлагается использовать специфическую зависимость сигналов ЯМР в FeVO_3 от постоянного магнитного поля H .

1. Результаты измерений

Исследовался сигнал свободной индукции ядер ^{57}Fe после воздействия на образец FeVO_3 импульса переменного магнитного поля $h(t)$ резонансной частоты ν_n с длительностью $\tau_n = 2 \mu\text{s}$. Максимальная мощность импульса составляла $5 \cdot 10^2 \text{ W}$ и ослаблялась внешним аттенуатором до 40 dB с шагом 1 dB. Измерения проводились на спектрометре ЯМР СХР-100 «Вукет» на частоте $\nu = 75.395 \text{ MHz}$ при $T = 4.2 \text{ K}$. В экспериментах H_1 и H находились в «легкой» плоскости намагничивания, при этом $H_1 \perp H$. Было обнаружено, что поведение сигнала свободной индукции и соответственно его спектра сильно зависит от мощности импульса радиочастотного (РЧ) поля P_{rf} . При малых P_{rf} (ослабление $\Delta P \geq 25 \text{ dB}$) спектр сигнала свободной индукции представляет собой узкую линию с шириной $\delta\nu \simeq 3 \text{ kHz}$, которая наблюдается только в полях $H \leq 200 \text{ Oe}$ [10,11]. При больших P_{rf} ($\Delta P < 25 \text{ dB}$) сигнал свободной индукции и его спектр обладают совершенно другими свойствами.¹

¹ Следует отметить, что в [9,11,13] величина ослабления мощности импульса РЧ-поля для больших и малых P_{rf} отличается от приведенных в данной работе. Это обусловлено температурной зависимостью ядерной намагниченности [16].

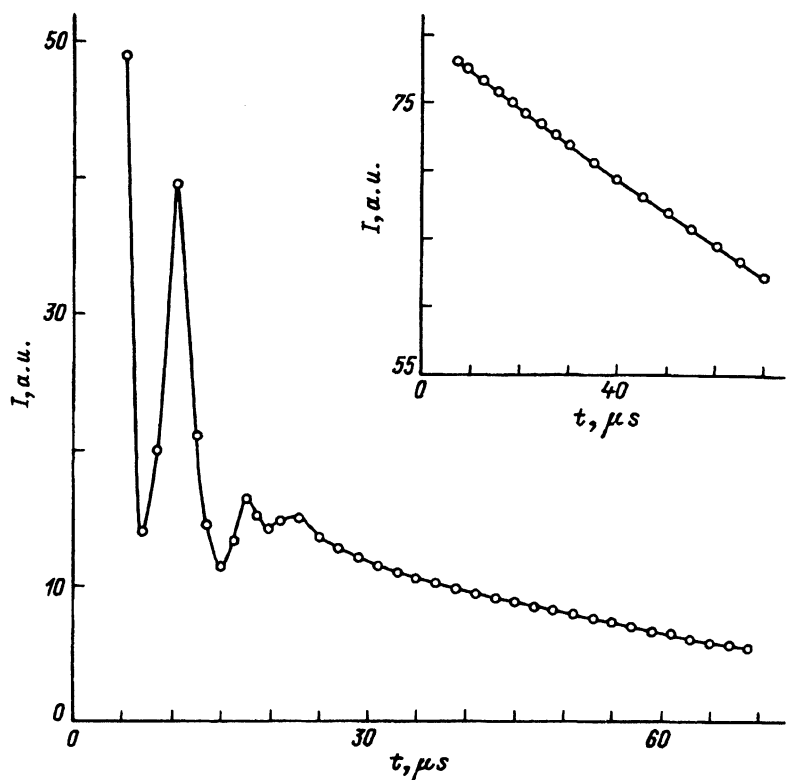


Рис. 1. Спад сигнала свободной индукции $I(t)$.

Одно из них связано с зависимостью интенсивности сигнала свободной индукции I от времени t . Если при малых P_{rf} функция $I(t)$ экспоненциально убывает с постоянной спада $T_2^* \approx 1/\delta\nu_n = 300 \mu s$ (кривая при $\Delta P = 30$ dB, $H = 20$ Oe приведена на вставке к рис. 1), то при больших P_{rf} на зависимости $I(t)$ появляются биения и кривая спада не аппроксимируется одной экспонентой. На рис. 1 приведены экспериментальные кривые $I(t)$, полученные при ослаблении $\Delta P = 2$ dB в поле $H = 500$ Oe. Биения $I(t)$ обусловлены стоячими акустическими волнами, механизм возбуждения которых обсуждался в [10,13,14]. Спад амплитуды этой части сигнала ($T_{2a}^* = 20 \mu s$) соответствует ширине линии акустического размерного резонанса $\delta\nu_a \approx 50$ kHz, а период биений определяется расщеплением в спектре стоячих акустических волн $\Delta\nu_a \approx 100$ kHz. Оставшаяся гладкая часть $I(t)$, которую мы будем обозначать как $I_n(t)$, связана с возбуждением ядерных спинов. Она описывается экспоненциальной кривой с постоянной спада $T_2^* \approx 80 \mu s$, что соответствует ширине линии ЯМР Fe^{57} $\delta\nu \approx 13$ kHz.

В данной работе исследовалась зависимость I_n от магнитного поля H для больших P_{rf} , при которых, как было показано в [13], магнитоупругое взаимодействие оказывает сильное влияние на ядерную спин-систему. На рис. 2 приведены кривые $I_n(H)$ при трех значениях P_{rf} , соответствующих ослаблению: 0; 2 и 4 dB. Полученные кривые

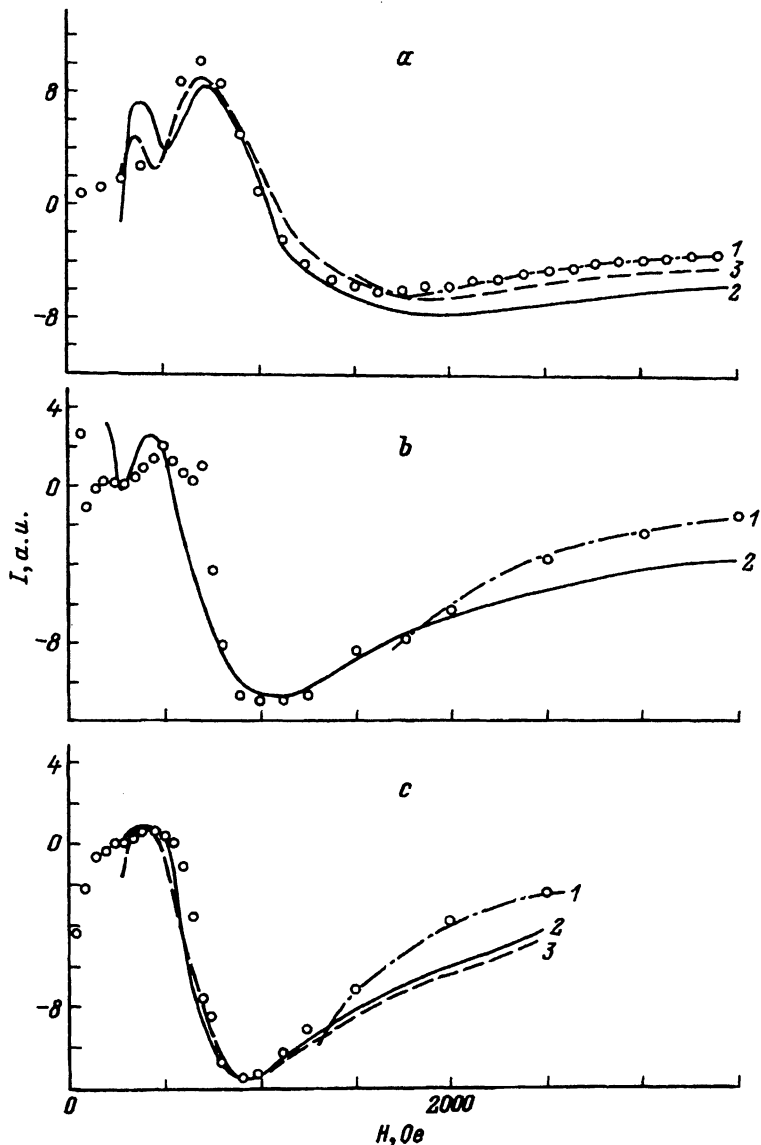


Рис. 2. Зависимость интенсивности ССИ от величины постоянного магнитного поля H при разных мощностях РЧ-импульса. $\Delta P = 0$ (a), 2 (b), 4 dB (c). Точки — эксперимент, линии 1-3 — теоретические кривые.

существенно отличаются от ожидаемой зависимости $I_n(H)$, которая следует из обычного выражения для сигнала свободной индукции от ядерных спинов в легкоплоскостном антиферромагнетике после короткого ($\tau_{rf} \ll T_2^*$) резонансного ($\nu = \nu_n$) импульса РЧ-поля

$$h(t) = H_1 \cos 2\pi\nu t. \quad (1)$$

С учетом эффектов усиления это выражение имеет вид [16]

$$I_n(t) = \nu_n k \eta |m^+(t)| = \nu_n k \eta m_0 \exp \left[- (t - \tau_{rf}) / T_2^* \right] \sin \gamma_n \eta H_1 \tau_{rf}, \quad (2)$$

$$\eta \simeq H_n / H, \quad (3)$$

где η — коэффициент усиления для легкоплоскостного антиферромагнетика при $\mathbf{H} \perp \mathbf{H}^{[16]}$, γ_n — ядерное гиромагнитное отношение, $H_n = 2\pi\nu_n/\gamma_n$ — сверхтонкое поле на ядре (в FeVO_3 $H_n \simeq 550$ кОе); коэффициент k определяется конструкцией резонатора, расположением в нем образца и т.д. В (2) мы пренебрегли релаксационным множителем, так как время необратимой ядерной магнитной релаксации $T_2 \gg T_2^*$.

Из (2) и (3) видно, что для I_n следует ожидать периодической зависимости от H с периодом осцилляций, убывающим при уменьшении H пропорционально H , и амплитудой, возрастающей при уменьшении H пропорционально $1/H$. Такое поведение $I_n(H)$ существенно отличается от экспериментальных кривых (рис. 2), которые больше напоминают кривые дисперсии, чем осциллирующие функции. Лишь при больших H ($H > 1.5$ кОе), соответствующих малым значениям аргумента синуса в (2), можно добиться удовлетворительного согласия теоретической и экспериментальной зависимостей $I_n(H)$, используя в качестве подгоночного параметра величину

$$a(H_1) = \gamma_n H_n \tau_{rf} H_1 \quad (4)$$

(штрихпунктирные линии 1 на рис. 2). Чтобы добиться такого согласия при малых H ($H \leq 1500$ Ое), необходимо найти модель усреднения осцилляций $I_n(H)$.

В нашей работе предлагается одна из таких моделей, которая исходит из магнитной анизотропии, наведенной внутренними напряжениями в образце, обусловленными воздействием переменного магнитного поля. Она интересна тем, что не только позволяет объяснить усреднение осцилляций $I_n(H)$ при малых H , но и дает правильное описание эволюции усредненных кривых $I_n(H)$ с изменением амплитуды переменного поля H_1 (1). В этом мы видим эвристическую ценность данной модели, поскольку требование к определенной зависимости I_n от H_1 изначально в нее не закладывалось.

2. Влияние наведенной магнитоупругой анизотропии на зависимость I_n от H и H_1

Формула (3) для η записана в предположении, что компонента поля магнитной анизотропии в базисной плоскости $H_{A\perp} \simeq 0$. По отношению к полю кристаллографической магнитной анизотропии это предположение вполне обосновано, поскольку влияние $H_{A\perp}$ гораздо слабее размагничивающего поля, связанного со спонтанным слабоферромагнитным моментом [15]. Но если поле $H_{A\perp}$ имеет достаточную величину, его необходимо учитывать. Одной из причин появления больших $H_{A\perp}$ является сильное магнитоупругое взаимодействие в этом кристалле. Так, в [11] было экспериментально доказано, что наведенная магнитоупругая анизотропия, связанная с деформациями образца, является причиной искажения магнитной структуры.

В этом случае для коэффициента усиления η получается иное выражение [17]

$$\eta = H_n / (H + \Delta H), \quad (5)$$

где

$$\Delta H = H_{A\perp} H_E / H_D, \quad (6)$$

$H_D \simeq 0.7 \cdot 10^5$ Ое — поле Дзялошинского, ответственное за появление слабоферромагнитного момента в FeBO_3 [15,16]. Множитель $H_E / H_D \simeq 10^2$ связан с так называемым обменным усилением, которое является специфическим эффектом для антиферромагнетиков [15,16]. Если поле $H_{A\perp}$ обусловлено неоднородными внутренними напряжениями в образце, то его неоднородности обеспечат разброс коэффициентов η , необходимый для усреднения осцилляций $I_n(H)$ при малых H ($H \leq 1500$ Ое). Заметим, что эти неоднородности являются, по-видимому, причиной отмеченного выше уширения линии ЯМР.

Основные трудности расчета $I_n(H)$, учитывающего эти неоднородности, связаны с угловой зависимостью $\eta(H)$. Дело в том, что формула (5) справедлива только при $\mathbf{H} \perp \mathbf{H}_{A\perp}$. Если $\mathbf{H} \parallel \mathbf{H}_{A\perp}$, то, согласно [16],

$$\eta(H) = \frac{H_n}{|H - \Delta H|} \quad (7)$$

и при $H \simeq \Delta H$ в угловой зависимости $\eta(H)$ появляется расходямость.

Мы пошли на значительное упрощение данной задачи (отказавшись от попыток добиться строгого количественного согласия с экспериментом), чтобы до минимума уменьшить число подгоночных параметров. Во-первых, мы пренебрегли угловой зависимостью $\eta(H)$ и пользовались для $\eta(H)$ формулой (5). Во-вторых, мы ограничились равномерным распределением по ΔH в интервале от 0 до ΔH_0 , где ΔH_0 — подгоночный параметр. В этих приближениях усредненная интенсивность сигнала индукции

$$I_n(H, H_1, t) = \nu_n k m_0 \exp \left[- (t - \tau_{rf}) / T_2^* \right] (\Delta H_0)^{-1} \times \\ \times \int_0^{\Delta H_0} d(\Delta H) \eta(H, \Delta H) \sin(\gamma_n \tau_{rf} H_1 \eta(H, \Delta H)) \quad (8)$$

выражается через табулированные функции

$$I_n(\dot{H}, H_1, t) = f(t) \{ \text{Si}(x_1) - \text{Si}(x_0) \}, \quad (9)$$

где

$$f(t) = \nu_n k m_0 (H_n / \Delta H_0) \exp \left[- (t - \tau_n) / T_2^* \right], \quad (10)$$

$\text{Si}(x)$ — функция интегральный синус [18].

$$x_0 = a(H_1) / H, \quad x_1 = a(H_1) / H + \Delta H_0, \quad (11)$$

$a(H_1)$ определяется формулой (4). Поскольку величина амплитуды H_1 поддается лишь очень грубой оценке, мы подбирали значения $a(H_1)$ из

условия наилучшего совпадения $I_n(H, t)$ с каждой из экспериментальных кривых на рис. 2. Таким образом, в нашей схеме имеются четыре подгоночных параметра — ΔH_0 и $a(H_1)$ для трех значений H_1 .

Для облегчения процедуры подгонки формулу (9) удобно записать в несколько ином виде

$$I_n(H, H_1, t) = f(t)[\Phi(y_1) - \Phi(y_0)], \quad (12)$$

где

$$\Phi(y) = \text{Si}(1/y), \quad y_0 = H/a(H_1), \quad y_1 = (H + \Delta H_0)/a(H_1). \quad (13)$$

При такой записи численный счет сводится к построению таблицы значений $\Phi(y)$ по известным значениям $\text{Si}(x) = \text{Si}(1/y)$ [18]. Сдвиг аргумента $y_1 - y_0$ подбирался из условия наилучшего согласия с экспериментом для величины отношения

$$b(H_1) = I_n(H_{\min}, H_1, t)/I_n(H_{\max}, H_1, t), \quad (14)$$

где $I_n(H_{\min}, H_1, t)$ и $I_n(H_{\max}, H_1, t)$ соответствуют значениям $I_n(H, t)$ (12) в точках минимума и максимума по H . По величине этого сдвига сразу определяются ΔH_0 и $a(H_1)$. Однако полученные таким способом значения ΔH_0 оказались различными для всех трех кривых (рис. 2): для 0 dB $\Delta H_0 \approx 0.7$ кОе, для 2 dB $\Delta H_0 \approx 1$ кОе, для 4 dB $\Delta H_0 \approx 1.1$ кОе. Чтобы добиться наилучшего согласия для всех трех кривых при одном значении ΔH_0 , пришлось выбрать $\Delta H_0 \approx 1$ кОе, что соответствует полю наведенной магнитоупругой анизотропии $H_{A1} \approx 25$ Ое. Значения y_0, y_1 и $a(H_1)$, определенные с $\Delta H_0 \approx 1$ кОе, приведены в таблице.

Кривые $I_n(H)$ (12) при этих значениях параметров приведены на рис. 2 сплошными линиями 2. Видно, что отклонения экспериментальных точек от теоретических кривых в несколько раз превосходят экспериментальную погрешность, поэтому можно говорить лишь о качественном согласии с экспериментом. Однако необходимо отметить следующее. Для сглаживания осцилляций I_n (2) по H мы использовали усреднение только лишь по неоднородностям коэффициента усиления $\eta(H, \Delta H)$ (5), который не зависит от амплитуды H_1 . В то же время при этом удалось описать зависимость усредненных кривых I_n (12) от H_1 , характеризуемую параметром $b(H_1)$ (14), который для наших экспериментальных кривых изменялся в несколько раз.

Значения подгоночных параметров для разных мощностей РЧ-импульса (H — в кОе)

	$\Delta P, \text{ dB}$					
	0		2		4	
	H_{\max}	H_{\min}	H_{\max}	H_{\min}	H_{\max}	H_{\min}
	0.7 ± 0.05	1.7 ± 0.4	0.5 ± 0.05	1.1 ± 0.2	0.4 ± 0.05	1.0 ± 0.15
y_0	0.15	0.39	0.16	0.39	0.16	0.4
y_1	0.35	0.59	0.52	0.75	0.56	0.8
$a(H_1), \text{ кОе}$	4.6		2.75		2.5	

Выше в качестве одного из направлений поиска количественного согласия указывалось на учет угловой зависимости $\eta(H)$. Определенным обоснованием такой возможности являются штриховые кривые β на рис. 2, соответствующие упомянутым выше значениям ΔH_0 (0.7, 1 и 1.1 kOe) при разных H_1 . Из этих кривых следует, что с уменьшением H_1 все характерные точки на графике $I_n(H)$ смещаются в сторону меньших H и одновременно увеличивается величина ΔH_0 , т.е. увеличивается разброс значений $\eta(H)$ (5). Именно такая тенденция должна иметь место при учете угловой зависимости $\eta(H)$, о чем упоминалось выше в связи с формулой (7).

В заключение обратим внимание на следующее обстоятельство. Представленные выше экспериментальные результаты получены на очень совершенных монокристаллах FeVO_3 , для которых стандартные структурные методы не позволяют обнаружить каких-либо отклонений от идеальности. В то же время такие отклонения, как следует из нашего анализа, легко обнаруживаются с помощью ЯМР. Это указывает на перспективность использования методов ЯМР для контроля качества монокристаллических образцов магнитных материалов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (93-02-14026).

Список литературы

- [1] Бородин В.А., Дорошев В.Д., Ключан В.А. и др. // ФТТ. 1976. Т. 18. № 7. С. 1852-1860.
- [2] Залесский А.В., Саввинов А.М., Желудев И.С., Иващенко А.Н. // ЖЭТФ. 1975. Т. 68. № 4. С. 1449-1459.
- [3] Сериков В.В., Клейнерман Н.М., Юрчиков Е.Е. и др. // ФММ. 1984. Т. 58. № 2. С. 282-287.
- [4] Сериков В.В., Белозеров Е.В., Клейнерман Н.М. и др. // ФММ. 1988. Т. 66. № 1. С. 80-85.
- [5] Сериков В.В., Клейнерман Н.М., Богданови А.М., Куркин М.И., Майков В.В. // ФММ. 1993. Т. 75. № 2. С. 57-68.
- [6] Дорошев В.Д., Ковтун Н.М., Селезнев В.Н., Сирюк В.М. // Письма в ЖЭТФ. 1971. Т. 13. № 12. С. 672-675.
- [7] Петров М.П., Смоленский Г.А., Паугурт А.П. и др. // ФТТ. 1972. Т. 14. № 1. С. 109-113.
- [8] Буньков Ю.М., Пунккинен М., Юпинен Е.Е. // ЖЭТФ. 1978. Т. 74. № 3. С. 1170-1176.
- [9] Багаутдинов Р.А., Богданова Х.Г., Голенищев-Кутузов В.А., Еникеева Г.Р., Медведев Л.И. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 3. С. 924-926.
- [10] Петров М.П., Иванов А.В., Паугурт А.П., Плешаков И.В. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 6. С. 1819-1825.
- [11] Богданова Х.Г., Голенищев-Кутузов В.А., Медведев Л.И., Куркин М.И., Туров Е.А. // ЖЭТФ. 1989. Т. 96. № 2. С. 613-620.
- [12] Дзялошинский И.Е. // ЖЭТФ. 1957. Т. 32. № 6. С. 1547-1562.
- [13] Богданова Х.Г., Голенищев-Кутузов В.А., Медведев Л.И., Куркин М.И., Низамиев И.Р., Танкеев А.П. // ЖЭТФ. 1993. Т. 103. № 1. С. 163-171.
- [14] Лужовой А.А., Туров Е.А. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 10. С. 358-367.
- [15] Уговин В.И., Преображенский В.Л. // УФН. 1988. Т. 155. № 4. С. 593-621.
- [16] Куркин М.И., Туров Е.А. ЯМР в магнитоупорядоченных веществах и его применения. М.: Наука, 1990. 248 с.
- [17] Куркин М.И., Райдугин Ю.Г., Седышкин В.Н., Танкеев А.П. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 6. С. 1577-1582.
- [18] Таблицы интегрального синуса и косинуса / Под ред. В.А. Диткина. М.: Изд-во АН СССР, 1954. 475 с.