

Влияние нейтронного облучения на длинноволновые магнитные возбуждения в $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите

© Ю.Н. Михайлов, В.А. Казанцев

Институт физики металлов УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

E-mail: vkazantsev@imp.uran.ru

Выполнен энергетический анализ малоуглового рассеяния нейтронов в исходном и облученном быстрыми нейтронами $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите. Обнаружено, что в исходном феррите ниже T_C неупругое рассеяние нейтронов обусловлено не только внутримоментными спиновыми волнами, но и значительным вкладом внутримоментных (w) и локализованных вблизи доменных границ (nw) длинноволновых магнитных возбуждений. В облученном образце таких магнитных возбуждений гораздо меньше. Предполагается, что повышенная плотность состояний w - и nw -магнитных возбуждений связана с конкуренцией между междоменными и внутримоментными обменными взаимодействиями, которая значительно ослабевает в облученном феррите (где между соответствующими обменными интегралами возникает соотношение $J_{AB} \gg J_{BB}$).

Работа выполнена по плану РАН (тема № 01.2.006 13394) и Минобрнауки РФ (контракт № 02.518.11.7026), программы фундаментальных исследований ОФН РАН „Нейтронные исследования структуры вещества и фундаментальных свойств материи“ (проект № 33 УрО РАН), программы Президиума РАН „Влияние атомно-кристаллической и электронной структуры на свойства конденсированных сред“ (проект № 21 УрО РАН).

1. Введение

В реальных (многодоменных) ферромагнетиках кроме внутримоментной (хольштейн-примаковской) ветви спиновых волн при малых волновых векторах существенными оказываются еще два типа длинноволновых магнитных возбуждений (w и nw). Согласно [1], w -возбуждения соответствуют колебаниям доменных границ. Энергия nw -возбуждений, локализованных вблизи доменных границ, отличается от энергии внутримоментных магнонов из-за дипольного взаимодействия колебаний намагниченностей соседних доменов, которые антипараллельны друг другу. В длинноволновой области w - и nw -возбуждения даже в изотропном ферромагнетике имеют отличные от нуля энергии. Поэтому экспериментальные дисперсионные кривые спиновых волн ферромагнетиков, в которых существует значительная плотность состояний таких магнитных возбуждений, должны иметь энергетические щели.

Действительно, такие энергетические щели были обнаружены как в инварных (Fe_3Pt , $Fe_{72}Pt_{28}$, $Fe_{0.65}Ni_{0.35}$) сплавах [2–4], так и в $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите [5]. В работах [4,5] заметная в эксперименте величина плотности состояний w - и nw -магнитных возбуждений в инварном сплаве и феррите связана с их неоднородными магнитными структурами, которые обусловлены конкурирующим обменным взаимодействием. Было сделано предположение о том, что в таких магнитных структурах происходит распад больших доменов на мелкие в широком температурном интервале ниже точки Кюри. Следовательно, при этих температурах увеличивается число доменов и протяженность доменных границ, что приводит (соответственно) к росту плотности состояний длинноволновых nw - и w -магнитных возбуждений.

Согласно [6], при облучении окисных магнетиков большим флюенсом быстрых нейтронов наблюдается возникновение различных типов спинового упорядочения в зависимости от возникающих структурных особенностей. Так, например, в исходном $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите существует конкуренция междоменными и внутримоментными обменными взаимодействиями, которая значительно уменьшается после облучения образца большим флюенсом быстрых нейтронов [7]. Поэтому, проведя энергетический анализ малоуглового рассеяния нейтронов в исходном и облученном феррите, можно проверить — действительно ли конкурирующее обменное взаимодействие является причиной увеличения плотности состояний длинноволновых магнитных возбуждений w - и nw -типа.

2. Методика измерений

Эксперименты по исследованию малоуглового рассеяния нейтронов в исходном и облученном быстрыми нейтронами $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите были выполнены на трехосевом нейтронном спектрометре. Длина волны падающих на образец нейтронов, сформированной двойным кристаллом-монохроматором из пиролитического графита (плоскость отражения (002)), составляла 0.3 нм. В качестве анализатора использовали плоскость (111) деформированного монокристалла германия. Коллимации при различных углах рассеяния (g_0) указаны в подписях к соответствующим рисункам. Энергетический анализ рассеянных нейтронов выполнен методом постоянного угла рассеяния. Образец имел форму цилиндра диаметром 10 мм и высотой 15 мм.

3. Результаты экспериментов

Измерения температурных зависимостей интенсивности малоуглового рассеяния нейтронов при различных (но фиксированных) углах рассеяния (q_0) проведены в исходном $\text{Zn}_{0.60}\text{Ni}_{0.40}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -феррите. Эксперименты выполнены на трехосевом нейтронном спектрометре как в режиме обычного дифрактометра (без кристалла-анализатора), так и с использованием кристалл-анализатора, установленного на длину волны первичного пучка нейтронов. Сопоставление результатов измерений, полученных этими методами, позволяет выделить интенсивность неупругой составляющей рассеянных нейтронов. Некоторые экспериментальные данные (после вычитания фона и нормировки) представлены на рис. 1. Из рисунка видно, что вклад в интенсивность от неупругого рассеяния (разница между кривыми 1 и 2) возникает в больших интервалах температур ниже точки Кюри ($T_C \cong 445$ К).

Спектры энергетического анализа малоуглового рассеяния нейтронов в исходном $\text{Zn}_{0.60}\text{Ni}_{0.40}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -феррите

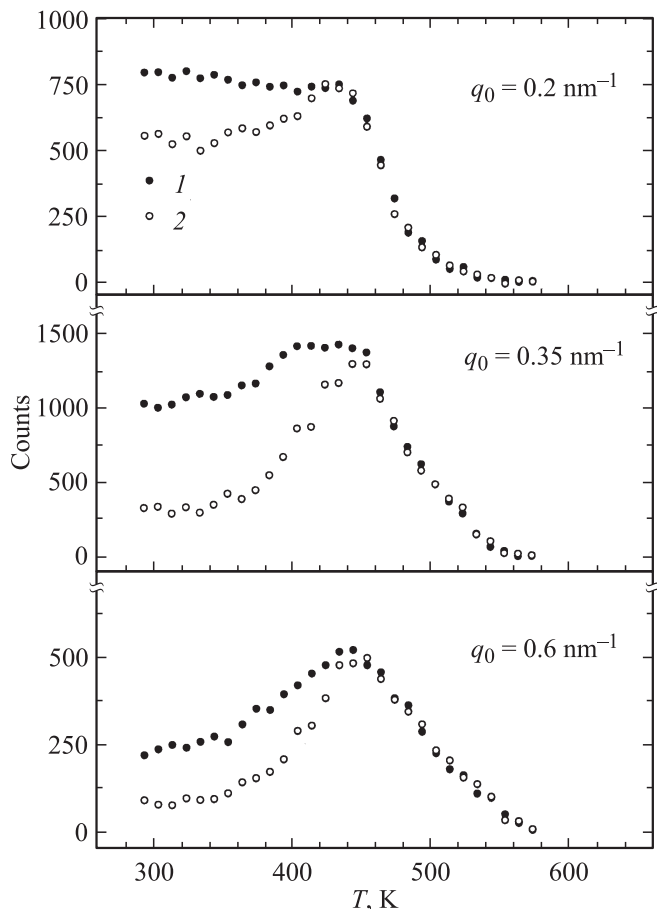


Рис. 1. Сравнение температурных зависимостей интенсивности малоуглового рассеяния нейтронов, измеренных без анализатора (1) и с анализатором (2), в необлученном $\text{Zn}_{0.60}\text{Ni}_{0.40}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -феррите. Коллимации при углах рассеяния: $q_0 = 0.2 \text{ nm}^{-1}$ ($\alpha_1 = 10'$, $\alpha_2 = 10'$, $\alpha_3 = 15'$), $q_0 = 0.35, 0.6 \text{ nm}^{-1}$ ($\alpha_1 = 10'$, $\alpha_2 = 30'$, $\alpha_3 = 15'$).

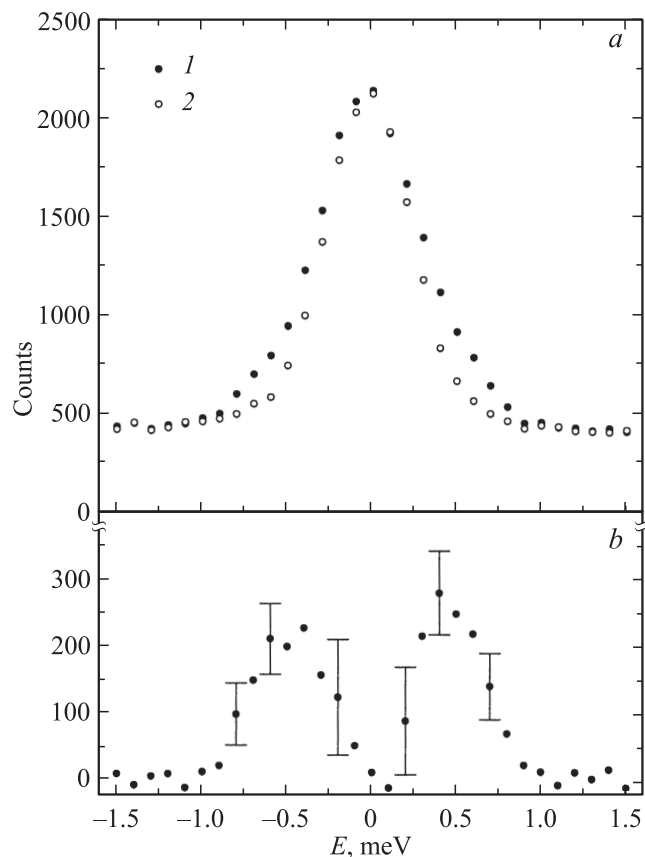


Рис. 2. *a*) Спектры энергетического анализа малоуглового рассеяния нейтронов в исходном $\text{Zn}_{0.60}\text{Ni}_{0.40}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -феррите при 373 (1) и 503 К (2). *b*) Разностный спектр, полученный путем вычитания кривой 2 из кривой 1.

были получены для ряда фиксированных q_0 и температур. При температурах $T > T_C$, где (согласно рис. 1) нет неупругой составляющей рассеяния нейтронов, спектры имеют форму гауссиана с полной шириной на половине максимума (FWHM), примерно равной инструментальному разрешению спектрометра. В то же время в области температур, соответствующих неупругой составляющей рассеяния нейтронов, энергетический анализ дает максимумы с FWHM, превышающей энергетическое разрешение прибора. На рис. 2, *a* показаны результаты измерений для $q_0 = 0.35 \text{ nm}^{-1}$. Видно, что спектр энергетического анализа в магнитоупорядоченном состоянии имеет форму, отличную от гауссиана, с большей FWHM, чем у спектра, полученного при температуре выше точки Кюри.

Для выделения особенностей, которые соответствуют уширенным спектрам, была проведена процедура вычитания аппаратного вклада из экспериментальных кривых энергетического анализа. В качестве инструментального разрешения использовали пики энергетического анализа, измеренные при температурах, где нет неупругого вклада. На рис. 2, *b* приведены такие результаты для $q_0 = 0.35 \text{ nm}^{-1}$. Установленный таким способом чисто магнитный спектр состоит из двух хорошо

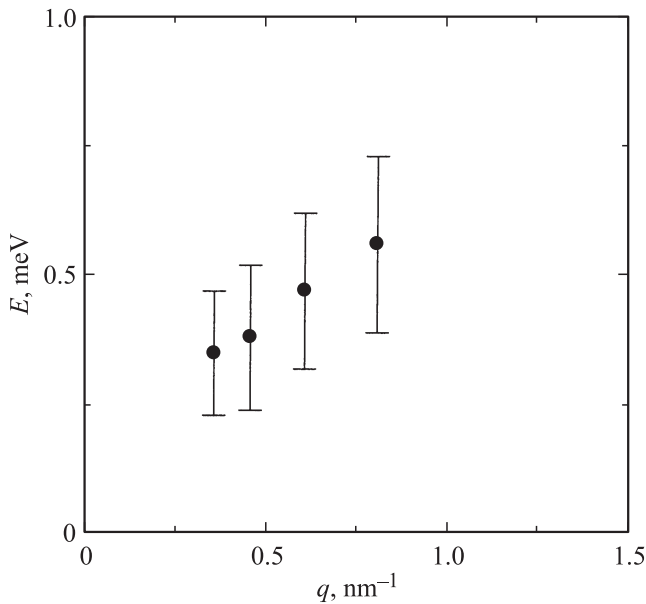


Рис. 3. Энергии максимумов магнитного неупругого рассеяния нейтронов в зависимости от волнового вектора в исходном $\text{Zn}_{0.60}\text{Ni}_{0.40}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -феррите при 373 К.

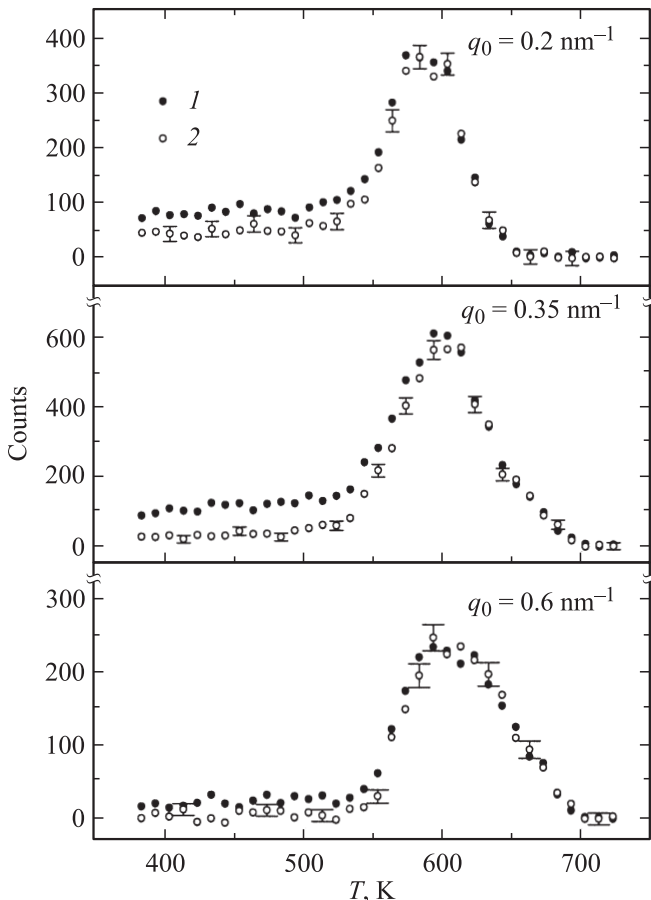


Рис. 4. Сравнение температурных зависимостей интенсивности малоуглового рассеяния нейтронов, измеренных без анализатора (1) и с анализатором (2), в облученном $\text{Zn}_{0.60}\text{Ni}_{0.40}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -феррите. Коллимации при углах рассеяния: $q_0 = 0.2 \text{ nm}^{-1}$ ($\alpha_1 = 10'$, $\alpha_2 = 10'$, $\alpha_3 = 15'$), $q_0 = 0.35, 0.6 \text{ nm}^{-1}$ ($\alpha_1 = 10'$, $\alpha_2 = 30'$, $\alpha_3 = 15'$).

разрешенных максимумов, имеющих примерно равные по абсолютной величине энергии. Энергии максимумов магнитного неупругого рассеяния нейтронов слабо зависят от волнового вектора при постоянной температуре. Экстраполяция такой зависимости, представленной на рис. 3, на нулевой волновой вектор свидетельствует о наличии энергетической щели в дисперсионной кривой этих магнитных возбуждений.

Затем температурные зависимости интенсивности малоуглового рассеяния нейтронов (при фиксированных углах рассеяния) без кристалла-анализатора и с кристаллом-анализатором были измерены в облученном быстрыми нейтронами (флюэнсом $\Phi \approx 2 \cdot 10^{24} \text{ n/m}^2$, $E_n > 1 \text{ MeV}$) $\text{Zn}_{0.60}\text{Ni}_{0.40}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -феррите. Результаты измерений (после вычитания фона и нормировки) при таких же волновых векторах, как и в исходном образце, приведены на рис. 4. Видно, что в облученном образце ниже точки Кюри наблюдается значительное уменьшение интенсивности упругого диффузного рассеяния и неупругого вклада при всех волновых векторах. Кроме того, из положения максимумов магнитного критического рассеяния нейтронов следует, что в облученном $\text{Zn}_{0.60}\text{Ni}_{0.40}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -феррите изменилась температура Кюри, которая стала равной $T_C \cong 600 \text{ K}$.

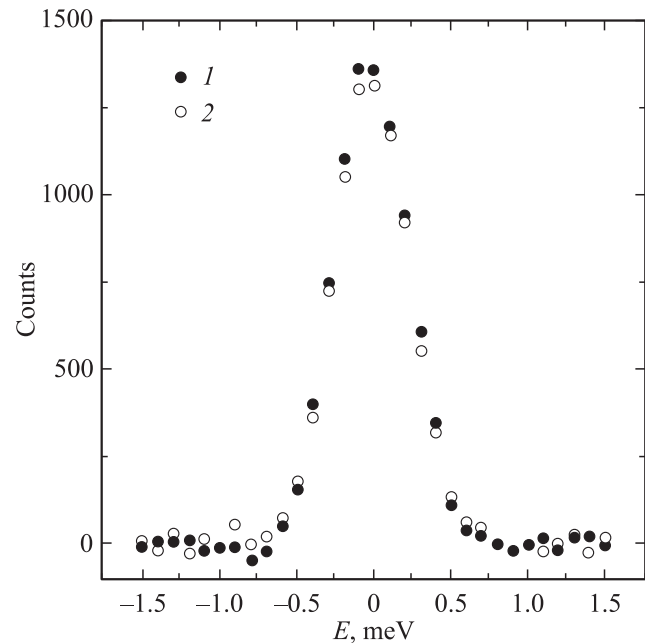


Рис. 5. Спектры энергетического анализа малоуглового рассеяния нейтронов в облученном быстрыми нейтронами $\text{Zn}_{0.60}\text{Ni}_{0.40}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -феррите при 543 (1) и 663 К (2).

Чтобы оценить энергии неупругого рассеяния нейтронов от облученного феррита, мы сделали энергетический анализ. На рис. 5 представлены (после вычитания фона) результаты такого анализа для $q_0 = 0.35 \text{ nm}^{-1}$. Измерения выполнены ниже и выше точки Кюри. Оба спектра имеют примерно одинаковые FWHM. Поэтому можно считать, что по сравнению с исходным образцом

малоугловое неупругое рассеяние нейтронов в облученном быстрыми нейтронами $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите при $T < T_C$ (рис. 4) имеет в основном более низкие энергии, которые находятся в пределах энергетического разрешения спектрометра.

4. Обсуждение результатов

В исходном $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите ионы цинка находятся только в тетраэдрических позициях, а ионы никеля — в октаэдрических в соответствии с формулой $Zn_xFe_{1-x}[Ni_{1-x}Fe_{1+x}]O_4$. В то же время, поскольку структура шпинели содержит большое число незанятых тетраэдрических и октаэдрических пустот, при облучении ее быстрыми нейтронами возможно перераспределение ионов (с существенно разными радиусами) по неэквивалентным подрешеткам. Следовательно, такое нейтронное разупорядочение должно влиять как на магнитное состояние, так и на изменение параметра элементарной ячейки образца, которые зависят от его состава. Однако в случае $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррита параметр решетки после облучения практически не изменяется [7]. Это связано с тем обстоятельством, что указанный образец имеет состав, близкий к среднему между нормальной ($ZnFe_2O_4$) и обращенной ($NiFe_2O_4$) шпинелью. А как известно [8], изменение степени обращенности приводит к уменьшению параметра решетки нормальной и к его увеличению в случае обращенной шпинели.

Согласно [6], результирующий магнитный момент исходных Ni–Zn-ферритов при небольших концентрациях цинка (до $x \cong 0.40$) линейно увеличивается. Это обусловлено уменьшением намагниченности тетраэдрической подрешетки из-за разбавления ее диамагнитными ионами Zn^{2+} и увеличением намагниченности октаэдрической подрешетки в результате замены ионов Ni^{2+} на ионы Fe^{3+} , которые имеют большой магнитный момент. Однако при дальнейшем росте концентрации Zn происходит отклонение среднего магнитного момента от линейного поведения и обращение его в нуль при значении $x \cong 0.80$. В области составов $x \cong 0.60–0.75$, где находится и исследуемый нами феррит, при низких температурах наблюдаются магнитная ненасыщаемость и малоугловое диффузное рассеяние нейтронов значительной величины. Эти экспериментальные факты свидетельствуют о присутствии магнитных неоднородностей Z-составляющей магнитного момента. Кроме того, из результатов малоуглового диффузного рассеяния нейтронов, полученных в [9] и в настоящей работе (рис. 1), следует, что неоднородная магнитная структура в $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите существует во всем температурном интервале ниже T_C . Такая магнитная структура Ni–Zn-ферритов с большим содержанием цинка возникает из-за конкуренции межподрешеточных и внутримолекулярных обменных взаимодействий. Поэтому, так же как в [5], можно предположить, что обусловленная конкурирующим обменным взаимодействием неоднородная магнитная структура в исходном $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите является причиной повышен-

ной плотности состояний длинноволновых магнитных возбуждений (w - и nw -типа).

После облучения $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррита большим флюенсом быстрых нейтронов происходит полное разупорядочение катионов со статистическим ($\delta = 1/3$ — степень обращенности шпинели; $S = 0$ — параметр дальнего порядка) распределением их по „разрешенным“ в структуре шпинели позициям [6]. Эти структурные особенности разупорядоченного состояния и определяют тип спинового упорядочения. Так как в разупорядоченных облучением Ni–Zn-ферритах (независимо от состава) 2/3 тетраэдрических и октаэдрических позиций занято ионами Fe^{3+} , возникает большое число $Fe^{3+}(A)–O^{2-}–Fe^{3+}(B)$ -межподрешеточных связей. Такое обменное взаимодействие гораздо сильнее других типов обмена и приводит к более однородному ферромагнитному упорядочению, которое способствует увеличению размеров доменов и соответственно уменьшению их числа и протяженности доменных границ. Поэтому в облученном быстрыми нейтронами $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррите плотность состояний длинноволновых магнитных возбуждений (nw - и w -типа) уменьшается. Об этом свидетельствует меньшая величина интенсивности неупругого рассеяния нейтронов в облученном образце (ср. рис. 4 и 1), возникающей в основном от внутримолекулярных спиновых волн.

5. Заключение

Полученные экспериментальные данные свидетельствуют о том, что имеется связь между увеличенной плотностью состояний внутримолекулярных w -, а также локализованных вблизи доменных границ nw -длинноволновых магнитных возбуждений и неоднородной магнитной структурой исходного $Zn_{0.60}Ni_{0.40}Fe_2O_4$ -феррита, которая обусловлена конкурирующими (межподрешеточным и внутримолекулярным) обменными взаимодействиями.

Список литературы

- [1] М.И. Куркин, А.П. Танкеев. ФММ **36**, 1149 (1973).
- [2] Y. Ishikawa, M. Kohgi, S. Onodera, V.H. Grier, G. Shirane. Solid State Commun. **57**, 535 (1986).
- [3] N. Rosov, J.W. Lynn, J. Kastner, E.F. Wassermann, T. Chattopadhyay, H. Bach. J. Appl. Phys. **75**, 6072 (1994).
- [4] Ю.Н. Михайлов, В.А. Казанцев. Письма в ЖЭТФ **80**, 226 (2004).
- [5] Ю.Н. Михайлов, В.А. Казанцев. ФТТ **50**, 46 (2008).
- [6] Ю.Г. Чукалкин. Структура и магнетизм оксидов, облученных быстрыми нейтронами. Автореф. докт. дис. Екатеринбург (2000).
- [7] Yu.G. Chukalkin, V.R. Shtirts. Status Solidi A **160**, 185 (1997).
- [8] E.J.W. Verwey, E.L. Heilmann. J. Chem. Phys. **15**, 174 (1947).
- [9] С.Ф. Дубинин, С.К. Сидоров, Ю.Г. Чукалкин, В.Д. Пархоменко, Б.Н. Гошицкий, В.Г. Вологин, В.В. Петров. В сб.: Нейтронография металлов, сплавов и соединений / Под ред. С.К. Сидорова. УНЦ АН СССР, Свердловск (1977). С. 4.