

УДК 539.143.43

© 1992

МНОЖЕСТВЕННОЕ ЯДЕРНОЕ ЭХО В МАГНЕТИКАХ ПРИ НЕРАВНЫХ ДЛИТЕЛЬНОСТЯХ ВОЗБУЖДАЮЩИХ ИМПУЛЬСОВ

И. Г. Клинтари

Численными методами осуществлен расчет формы эха в магнетиках при резонансном возбуждении неоднородно-уширенной линии ЯМР неравными импульсами большой длительности. Показано, что сигналы множественного эха в хановской двухуровневой системе ядерных спинов могут формироваться при воздействии на нее двух импульсов прямоугольной формы. Дополнительные сигналы эха возникают в результате фокусировки нерезонансной группы спинов и наблюдаются в моменты времени, зависящие от длительности импульсов. Расчетные данные подтверждаются результатами экспериментального исследования формы эха в различных магнетиках.

Множественное эхо (МЭ) в магнитоупорядоченных веществах представляет собой совокупность из нескольких откликов, возникающих после воздействия на систему ядерных спинов двух возбуждающих импульсов резонансной частоты. В зависимости от характера распределения вторичных сигналов во времени можно условно выделить два типа сигналов МЭ. Сигналы первого типа характеризуются регулярным распределением составляющих его компонент: они образуют серию равноотстоящих максимумов, наблюдающихся в моменты времени, кратные задержке между возбуждающими импульсами. Формирование этих откликов в основном связано с особенностями строения и взаимодействия в магнетиках, описываемых в рамках квадрупольного или сул-накамуровского взаимодействия [1-4].

Сигналы второй группы могут формироваться в двухуровневой системе слабо взаимодействующих спинов при воздействии на нее двух импульсов неравной длительности, каждый из которых удовлетворяет условию $\tau_1^{-1}, \tau_2^{-1} \ll \Delta \omega_{1/2}$, где τ_1 и τ_2 — длительности импульсов, а $\Delta \omega_{1/2}$ — полуширина линии ЯМР. Возникающие при этом сигналы МЭ обычно имеют довольно сложную форму и характеризуются нерегулярным распределением структурных компонент [5-7]. В качестве иллюстрации на рис. 1 приведена осциллограмма сигнала эха, полученного в [7] для пленочного ферромагнитного образца FeNiCo, содержащего 70% Со. Согласно данным цитируемой публикации, после окончания второго импульса в общей сложности формируется 10 откликов разной интенсивности, наблюдающихся в следующие моменты времени:

$$t_1 = \tau_1 - \tau_2, \quad t_2 = \tau_2, \quad t_3 = \tau_1,$$

$$t_4 = \tau - \tau_2, \quad t_5 = \tau - (\tau_1 - \tau_2), \quad t_6 = \tau, \quad t_7 = \tau + (\tau_1 - \tau_2), \quad (1)$$

$$t_8 = \tau + \tau_2, \quad t_9 = \tau + \tau_1, \quad t_{10} = \tau + (\tau_1 + \tau_2),$$

где τ — задержка между импульсами, а t — время, отсчитываемое от момента выключения второго импульса. Когерентные отклики такого типа наблюдаются также в явлениях фотонного [8, 9], поляризационного [10] и ядерного спинового эха в немагнитных материалах [11, 12].

Для объяснения структуры МЭ в магнетиках обычно привлекается модель искажений вблизи фронтов импульсов [13], которая позволяет предсказать время появления отдельных максимумов эха. Однако строгий расчет интенсивности и формы сигналов в рамках этой модели к настоящему времени проведен лишь для одноимпульсного эха (ОЭ) [14], и его результаты не допускают обобщения на случай МЭ. С другой стороны, результаты численного анализа формы эха в немагнитных материалах, основанные на приближении прямоугольных импульсов [11, 12], не могут быть непосредственно использованы для интерпретации данных по МЭ в магнетиках, поскольку не учитывают особенностей резонанса в доменных границах последних.

В настоящей публикации приводятся результаты расчета формы сигналов МЭ в магнетиках, возникающих при возбуждении неоднородно-уширенной линии ЯМР прямоугольными импульсами неравной длительности. Расчетные данные сопоставляются с результатами экспериментального исследования как других авторов, так и полученными в настоящей работе.

1. Расчет формы эха при неравных длительностях импульсов одинаковой амплитуды

Сигнал эха в магнетиках при возбуждении симметричной линии ЯМР двумя прямоугольными резонансными импульсами длительностью τ_1 , τ_2 и амплитудой H_1 , H_2 описывается выражением [15]

$$I(t) = \int_0^{\infty} \eta F(\eta) d\eta \int_{-\infty}^{\infty} m^+(\eta, \Delta\omega, t) g(\Delta\omega) d(\Delta\omega). \quad (2)$$

Здесь $\Delta\omega = \omega_n - \omega_0$ — расстройка частоты прецессии отдельной изохроматы ω_n относительно центральной частоты линии ЯМР ω_0 , $g(\Delta\omega)$ и $F(\eta)$ — функции распределения ядер по частотам ЯМР $\Delta\omega$ и коэффициентам усиления η по радиочастотному (РЧ) полю: m^+ — поперечная составляющая ядерной намагниченности, которая без учета релаксационных процессов может быть представлена в виде [16]

$$m^+/m_0 = \left\{ 2 \frac{\omega_1 \omega_2^2 \Delta\omega}{\Omega_1^2 \Omega_2^2} \sin^2 \frac{\Omega_1 \tau_1}{2} \sin^2 \frac{\Omega_2 \tau_2}{2} - i \frac{\omega_1 \omega_2^2}{\Omega_1 \Omega_2^2} \sin \Omega_1 \tau_1 \sin^2 \frac{\Omega_2 \tau_2}{2} \right\} \exp [i\Delta\omega (\tau - t)], \quad (3)$$

где $\omega_{1,2} = \gamma H_{1,2} \eta$, $\Omega_{1,2} = (\omega_{1,2}^2 + \Delta\omega^2)^{1/2}$, m_0 — равновесное значение намагниченности, а γ — гиромагнитное отношение для ядер. В качестве функции формы линии ЯМР использовалась гауссова функция

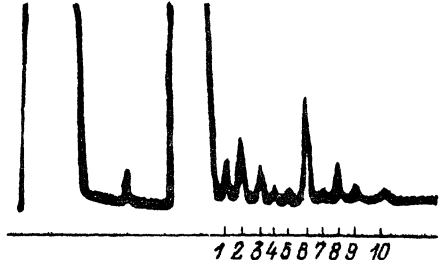


Рис. 1. Осциллограмма сигнала МЭ от плечного образца FeNiCo при $\tau_1 = 9,5$ мкс, $\tau_2 = 6,0$ мкс, $\tau = 20$ мкс [7].

$$g(\Delta\omega) = \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{1}{\Delta\omega_{1/2}} \exp[-\ln 2 (\Delta\omega / \Delta\omega_{1/2})^2], \quad (4)$$

а функция $F(\eta)$ в соответствии с [6] задавалась в виде

$$F(\eta) = \eta^{-1} \exp[-\ln 2 (\eta / \Delta\eta)], \quad (5)$$

где $\Delta\eta$ — среднее значение коэффициента усиления по объему образца.

Расчет выражений (2)—(5) проводился на ЭВМ по стандартным программам с автоматическим выбором шага и пределов интегрирования, обеспечивающим заданную точность счета. Поскольку в некогерентной спектроскопии ЯМР непосредственно измеряемой величиной является абсолютное значение суммарной переменной намагниченности, расчет осуществлялся для модуля выражения (2). В процессе расчетов учитывалось, что интенсивность отдельных компонент эха по-разному зависит от амплитуды импульсов [15], поэтому условия возбуждения подбирались таким образом, чтобы способствовать наилучшему разрешению многокомпонентной структуры сигнала.

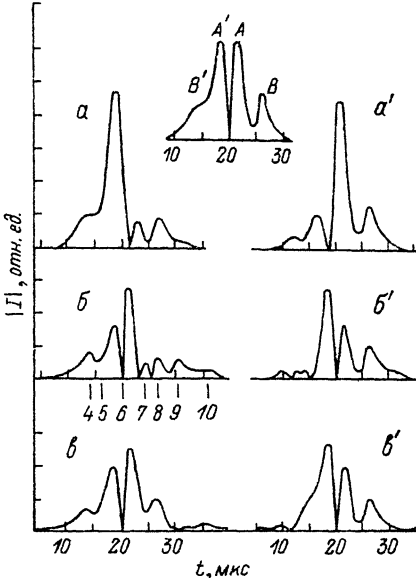
Прежде всего коротко сформулируем основные результаты, полученные ранее путем численного анализа исходных выражений для импульсов одинаковой длительности и амплитуды [6, 15]. Сигнал эха от длинных возбуждающих импульсов ($\tau_{1,2}^{-1} \ll \Delta\omega_{1/2}$) в общем случае состоит из двух пар максимумов: двугорбого эха, временной интервал между компонентами которого (A и A') зависит от ширины возбужденного участка спектра и амплитуды РЧ импульсов, и двух дополнительных компонент B и B' , смещенных на $\pm\tau_{1,2}$ относительно момента времени $t = \tau$ (рис. 2, вверху). Структура эха в области формирования компоненты B выражена гораздо более четко, чем в области формирования компоненты B' , а интенсивность первого сигнала почти в два раза превышает интенсивность второго. С ростом амплитуды РЧ поля импульсов интенсивность всех компонент эха возрастает, проходит через максимум, а затем плавно падает по величине. Компоненты B и B' достигают максимальной интенсивности при значительно меньших значениях $H_{1,2}$, чем компоненты A и A' . Наконец, с ростом длительности импульсов фиксированной амплитуды компоненты B и B' уширяются и их интенсивность заметно уменьшается. Эти данные хорошо согласуются с результатами экспериментального исследования формы эха в магнетиках [5, 6, 17].

Рассмотрим теперь результаты расчета формы сигнала эха для импульсов неравной длительности (рис. 2). Как видно из этого рисунка, увеличение длительности одного из импульсов при неизменной длительности другого практически не оказывает влияния на время формирования компонент A и A' , хотя и изменяет их относительную интенсивность. Вместе с тем компоненты B и B' расщепляются в серию структурных максимумов, время появления которых зависит от длительности возбуждающих импульсов. В результате сигнал эха принимает сложную, асимметричную форму, включающую в себя несколько смещенных во времени компонент. Форма соответствующего сигнала проявляет зависимость от отношения длительностей РЧ импульсов. Если импульсы мало отличаются друг от друга, наблюдается частичное наложение компонент эха и структура МЭ проявляется не в полной мере. Большое различие в длительностях импульсов приводит к уширению сигналов эха и уменьшению их интенсивности, что проявляется в сглаживании структуры МЭ. Наиболее четкая структура резонансного сигнала имеет место в случае, когда длительность первого импульса в полтора-два раза превышает длительность второго (рис. 2, б).

Сопоставим результаты проведенного расчета с экспериментально наблюдающейся структурой МЭ в FeNiCo (рис. 1). На рис. 2, б цифрами отмечено положение во времени различных компонент эха, обнаруженных в этой системе. (В дальнейшем вслед за авторами [7] через t_i ($i = 1, 2, \dots, 10$) будем обозначать

рис. 2. Зависимость формы эха от отношения длительностей возбуждающих импульсов при $\Delta\omega_{1/2} = 10^{-5} \text{ с}^{-1}$, $\gamma H_1 = \gamma H_2 = 6 \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$, $\Delta\eta = 500$, $\tau = 20 \text{ мкс}$.

Вверху: $\tau_1 = \tau_2 = 6 \text{ мкс}$. Слева: $\tau_2 = 6 \text{ мкс}$, $\tau_1/\tau_2 = 1.20$ (а), 1.66 (б), 2.33 (в). Справа: $\tau_1 = 6 \text{ мкс}$, $\tau_1/\tau_2 = 0.83$ (а'), 0.60 (б'), 0.43 (в'). Относительная точность счета 10^{-5} . Цифры на рис. 2, б отмечено положение во времени сигналов эха, представленных на рис. 1.



как сами сигналы МЭ, так и время их появления). Сравнение данных, представленных на рис. 1 и 2, б, свидетельствует о том, что семь из десяти наблюдаемых структурных компонент ($t_4 - t_{10}$) может формироваться от импульсов прямоугольной формы, причем наилучшее соответствие с результатами экспериментального исследования достигается при почти том же соотношении длительностей возбуждающих импульсов. Анализ ширины и формы других расчетных сигналов (рис. 2) позволяет предположить, что помимо упомянутых отключков определенный вклад в результирующую интенсивность сигнала могут давать компоненты типа $t = \tau \pm 2\tau_{1,2}$, $t = \tau - \tau_1$ и др. [5, 9], однако количественная оценка этого вклада в настоящее время не представляется возможной.

Сигналы t_1, t_2, t_3 , выделенные авторами [7] в отдельную группу, не могут быть получены в рамках рассматриваемых представлений и, следовательно, не являются сигналами эха от импульсов идеально прямоугольной формы.

2. Форма эха при неравных длительностях и амплитудах возбуждающих импульсов

До сих пор мы рассматривали ситуацию, когда длительности импульсов хотя и отличались друг от друга, однако были сравнимы между собой. Другой интересный случай имеет место, когда линия ЯМР возбуждается сначала длинным и маломощным ($\Delta\omega_{1/2}\tau \gg 1$), а затем коротким и мощным импульсом ($\Delta\omega_{1/2}\tau_2 \ll 1, H_2 \gg H_1$). Возникающий при этом сигнал эха носит название меточного [10, 11].

На рис. 3 приведена полученная нами осциллограмма сигнала меточного эха от поликристаллического образца феррита лития $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{2.5}\text{O}_4$, изготовленного по стандартной керамической технологии со 100%-ным изотопическим обогащением ядрами ^{57}Fe . Соответствующий сигнал состоит из двугорбого эха А и А', расположенного симметрично относительно момента времени $t = \tau$, и двух дополнительных максимумов СЭ и В, наблюдающихся соответственно при $t = \tau_1$ и $t = \tau + \tau_1$. Интенсивность и форма меточного эха в основном определяются параметрами первого возбуждающего импульса. С ростом его амплитуды временной интервал между максимумами двугорбого эха уменьшается, а сам сигнал постепенно сужается. Компонента В, как и в случае возбуждения одинаковыми импульсами, достигает максимальной интенсивности на начальном участке изменения H_1 , а затем резко спадает по величине. В области сравнительно больших значений H_1 форма меточного эха заметно искажается.

На рис. 4 показаны результаты расчета формы меточного эха, полученные путем численного интегрирования выражений (2) — (5) для значений параметров, характеризующих исследованную систему. Из сравнения данных, представленных на рис. 3 и 4, следует, что в модели прямоугольных импульсов удается описать

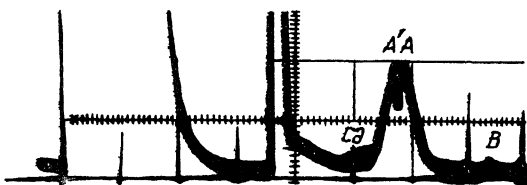


Рис. 3. Сигналы меточного эха от ядер ^{57}Fe в феррите лития $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{2.5}\text{O}_4$ на частоте возбуждения 74 МГц при $\tau_1 = 35$ мкс, $\tau_2 = 0.6$ мкс, $\tau = 50$ мкс, $\Delta\omega_{1/2} \approx 10^6$ с $^{-1}$, $T = 77$ К.

Обозначения компонент на рис. 3, 4 соответствуют принятым на рис. 2. Сигнал СЭ — стимулированное эхо.

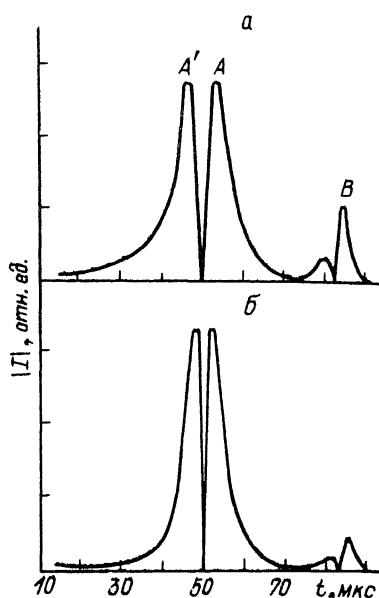


Рис. 4. Зависимость формы меточного эха от амплитуды первого импульса для следующих значений γH_1 : 3.5 (а), $7.0 \cdot 10^5$ с $^{-1}$ (б).

Расчитанные значения остальных параметров: $\tau_1 = 35$ мкс, $\tau_2 = 0.6$ мкс, $\tau = 50$ мкс, $\Delta\omega_{1/2} = 10^6$ с $^{-1}$, $\gamma H_2 = 5 \cdot 10^5$ с $^{-1}$, $\Delta\gamma = 10^5$.

форму и время появления трех (A, A' и B) из четырех наблюдающихся структурных компонент.

Рассмотрим более подробно некоторые особенности формирования сигнала меточного эха. С этой целью запишем выражение (3) для случая $H_2 \gg H_1$ и одновременно заменим $\tau - t$ на t' . В результате для поперечной составляющей ядерной намагниченности в условиях формирования меточного эха получим

$$m^+ / m_0 = \sin^2 \frac{\omega_2 \tau_2}{2} \left\{ \left[2 \frac{\omega_1 \Delta \omega}{\Omega_1^2} \sin^2 \frac{\Omega_1 \tau_1}{2} - i \frac{\omega_1}{\Omega_1} \sin \Omega_1 \tau_1 \right] \exp(i \Delta \omega t') \right\}. \quad (6)$$

Выражение в фигурных скобках описывает сигнал свободной прецессии (ССП) от первого импульса длительностью τ_1 [16]. Более подробный анализ, проведенный в [11], показал, что различия между формами СПП и меточного эха проявляются в области сравнительно больших времен, тогда как при $t \approx \tau$ ими можно пренебречь. Таким образом, характер изменения интенсивности меточного эха вблизи момента времени, равного задержке между импульсами, отражает особенности поведения СПП от импульса длительностью τ_1 , а компонента A соответствует максимуму на начальном участке сигнала индукции с характерным временем $\sim 1/\Delta\omega_{1/2}$ [8, 13].

Возможность формирования компоненты B в виде двугорбого максимума (рис. 4) подтверждается экспериментальным исследованием формы эха в сплавах Fe и Co с V (рис. 1 в [5]), а сигнал B' для меточного эха не наблюдается на эксперименте и отсутствует при численном анализе исходных выражений. Вопросы, связанные с особенностями формирования сигнала СЭ, будут рассмотрены в заключительной части работы.

Результаты проведенного расчета свидетельствуют о том, что вторичные сигналы эха в магнетиках могут формироваться от двух длинных импульсов идеально прямоугольной формы. Сложная структура возникающего при этом сигнала объясняется тем, что формирование эха в этом случае происходит за счет двух групп спинов с разными расстройками. Так, компоненты A и A' двугорбого эха формируются от группы спинов с $|\Delta\omega| = \omega_{1,2}$, а компоненты B и B' — от спинов с $|\Delta\omega| \gg \omega_{1,2}$ [15]. Если длительности импульсов отличаются друг от друга, нерезонансная группа изохромат образует серию дополнительных максимумов, временное положение которых зависит от длительности импульсов и задержки между ними.

В процессе анализа экспериментальных данных (рис. 1) отмечалось, что группа откликов t_1, t_2, t_3 , наблюдающихся сразу же вслед за вторым импульсом, не может быть получена в рамках модели прямоугольных импульсов. По поводу природы этих сигналов могут быть высказаны следующие соображения. Компонента t_2 представляет собой сигнал ОЭ от второго импульса длительностью τ_2 . В свою очередь компоненты t_1 и t_3 следует рассматривать как сигналы стимулированного эха (СЭ) от двух возбуждающих импульсов, подробно исследованные в [6] для различных магнитных материалов. Формирование этих откликов обычно связывается с наличием искажений вблизи фронтов импульсов [10, 13].

Если длительность первого импульса намного превышает длительность второго, сигналы t_1 и t_3 накладываются друг на друга, образуя сигнал СЭ на осциллограмме меточного эха (рис. 3). Характерно, что в феррите лития при использованных условиях возбуждения ОЭ не наблюдается, однако это не препятствует возникновению стимулированного эха. Этот факт свидетельствует о том, что оптимальные условия для формирования сигналов ОЭ и СЭ в общем случае отличаются друг от друга.

Уменьшение длительности второго импульса по сравнению с первым приводит к наложению и других, смещенных во времени, компонент эха, и при $\tau_2 \rightarrow 0$ сигнал принимает форму, изображенную на рис. 4. Отсутствие компоненты B' в области $t < \tau$ для меточного эха объясняется малой длительностью второго импульса, что позволяет пренебречь процессами потери и восстановления когерентности во время его действия [15].

Как следует из проведенного анализа, возможность формирования компонент B и B' от импульсов равной длительности и связанной с ними структуры МЭ при $\tau_1 \neq \tau_2$ определяется оптимальными условиями фокусировки нерезонансной группы изохромат [7, 15]. С экспериментальной точки зрения эти условия включают в себя большие коэффициенты по РЧ полю (с этой целью в [7] использовалось совмещение частот ядерного и ферромагнитного резонанса), достаточные времена релаксации, а также оптимальные значения длительностей и амплитуд возбуждающих импульсов. Особые требования, предъявляемые к мощности РЧ импульсов, объясняются тем, что отдельные компоненты МЭ достигают максимальной интенсивности при существенно различных значениях $H_{1,2}$.

Вместе с тем возможность наблюдения структуры МЭ в магнетиках зависит от ширины исследуемой линии ЯМР: при возбуждении сравнительно узких линий импульсами большой длительности сигналы B и B' уширяются и могут не разрешаться экспериментально в виде отдельных компонент [5]. В таких системах, к числу которых относится и исследованный нами феррит лития, структура резонансного сигнала может быть выявлена с помощью меточного эха.

Действительно, с одной стороны, из-за большой длительности первого импульса компонента B в условиях формирования меточного эха смещается в область больших времен и, таким образом, отделяется от компонент A и A' двугорбого

эха. С другой стороны, как отмечалось выше, форма меточного эха вблизи момента времени $t \approx \tau$ с хорошей степенью точности воспроизводит форму ССП от первого импульса (напомним, что в связи с особенностями резонанса в доменных границах ферромагнетиков спад интенсивности соответствующего сигнала носит монотонный характер [14, 18]).

В свою очередь время затухания ССП весьма чувствительно к условиям возбуждения линии ЯМР: при очень слабом возбуждении ($\tau_1^{-1} \ll \Delta\omega_{1/2}$ и $\omega_1 \ll \Delta\omega_{1/2}$) протяженность ССП во времени составляет τ_1 , однако с ростом H_1 она заметно уменьшается и может оказаться значительно короче длительности импульса [11, 16, 18]. Это приводит к сужению центральной части меточного эха (ср. кривые *a* и *b* на рис. 4), что также способствует разрешению структуры сигнала в виде компоненты *B*, смещенной к моменту времени $t = \tau + \tau_1$.

Следует отметить, что использованная нами аналогия между формами ССП и меточного эха не дает основания рассматривать эту компоненту как сигнал ОЭ от импульса длительностью τ_1 , поскольку в модели прямоугольных импульсов ее формирование оказывается возможным лишь благодаря наличию второго, короткого и мощного, импульса.

Автор выражает благодарность М. И. Куркину и В. И. Цифриновичу за полезное обсуждение вопросов, затронутых в статье.

Список литературы

- [1] Abe H., Yasuoka H., Hirai A. // J. Phys. Soc. Jap. 1966. V. 21. N 1. P. 77—89.
- [2] Абеляшев Г. А., Бережанский В. Н., Сергеев Н. А., Федотов Ю. В. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 1. С. 227—237.
- [3] Абесадзе Т. Ш., Ахалкаци А. М., Килиптари И. Г., Меликия М. Г., Шавишвили Т. М. // ЖЭТФ. 1989. Т. 96. № 1(7). С. 187—193.
- [4] Searle C. W., Davis J., Hirai A., Fukuda K. // Phys. Rev. Lett. 1971. V. 27. N 20. P. 1380—1382.
- [5] Kinnear R. W. N., Campbell S. J., Chaplin D. H. // Phys. Lett. A. 1980. V. 76. N 3, 4. P. 311—314.
- [6] Fowler D. K., Creagh D. C., Kinnear R. W. N., Wilson G. V. H. // Phys. Stat. Sol. (a). 1985. V. 92. N 2. P. 545—553.
- [7] Рейнгардт А. Е., Цифринович В. И., Новоселов О. В., Мальцев В. К. // ФТТ. 1983. Т. 25. № 10. С. 3163—3164.
- [8] Liao P. F., Hartmann S. R. // Phys. Lett. A. 1973. V. 44. N 5. P. 361—362.
- [9] Самарцев В. В., Трайбер А. С. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 9. С. 2784—2788.
- [10] Смоляков Б. П., Хаймович Е. П. // ЖЭТФ. 1979. Т. 76. № 4. С. 1303—1308.
- [11] Kunitomo M., Endo T., Nakanishi S., Hashi T. // Phys. Rev. A. 1982. V. 25. N 4. P. 2235—2246.
- [12] Кузьмин В. С., Рутковский И. З., Сайко А. П., Тарасевич А. Д., Федорук Г. Г. // ЖЭТФ. 1990. Т. 97. № 3. С. 880—890.
- [13] Цифринович В. И., Мушаилов Э. С., Бакшеев Н. В. и др. // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. № 4. С. 1481—1489.
- [14] Килиптари И. Г., Цифринович В. И. // ФТТ. 1991. Т. 33. № 10. С. 2852—2856.
- [15] Килиптари И. Г., Куркин М. И. // ФТТ. 1991. Т. 33. № 2. С. 324—330.
- [16] Bloom A. L. // Phys. Rev. 1955. V. 98. N 4. P. 1105—1111.
- [17] Dean R. H., Urwin R. J. // J. Phys. C. Sol. St. Phys. 1970. V. 3. N 8. P. 1747—1752.
- [18] Schenzle A., Wong N. C., Brewer R. G. // Phys. Rev. A. 1980. V. 21. N 3. P. 887—895.