Письма в ЖЭТФ, том 95, вып. 9, с. 530 – 533 © 2012 г. 10 мая

Изучение ферромагнитных корреляций, обусловленных примесями в немагнитных материалах, методом малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов

В. В. Рунов[1]*, Д. С. Ильин, М. К. Рунова, А. К. Раджабов*

Петербургский институт ядерной физики им. Константинова, 188300 Гатчина, Россия

Поступила в редакцию 7 марта 2012 г.

После переработки 28 марта 2012 г.

Обсуждается возможность изучения ферромагнитных корреляций, обусловленных примесями d-металлов в немагнитных матрицах. В качестве примера приведены результаты измерений поляризации и магнитно-ядерной интерференции, полученные путем анализа малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов в сплаве CuZn(20) с примесью Ni (1 ат.%). Показано, что Ni кластеризуется в CuZn-матрице с характерным радиусом корреляций $100 < R_c < 5000$ Å в зависимости от термообработки образцов. Вид кросс-коррелятора, определяющего магнитно-ядерную интерференцию, удовлетворительно описывается экспоненциальным законом $\exp(-r/R_c)$, где r – расстояние. Найдено, что немагнитная матрица CuZn(20) с почти равномерным распределением 1% примеси Ni обладает метамагнитными свойствами в поле $H \approx 0.5$ Тл при комнатной температуре.

Введение. В последнее время в литературе широко обсуждаются исследования магнетизма при комнатной температуре, вызванного примесями d-металлов и вакансиями в полупроводниках и наноструктурированных немагнитных оксидах (CeO_2, Al_2O_3, ZnO и т.д.) (см., например, [1–6]). Кроме чисто научного интереса к данному явлению, эти материалы планируется применять для изготовления элементов спинтроники в электронных приборах. Магнетизм в этих системах экспериментально изучается, как правило, интегральными методами. Например, квантовыми магнетометрами измеряется намагниченность образцов в зависимости от величины прикладываемого магнитного поля. Естественно, что измерения интегральной намагниченности не могут дать ответа на вопрос о распределении примеси в образце, т.е. о характере спиновых корреляций, что важно для понимания физических процессов в материале. Остается только предположить желаемое, считая, что примеси или вакансии распределены в материале статистически однородно. Так ли это? В данной работе мы продемонстрируем, что информацию о магнитных корреляциях в таких системах можно получить методом малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов, а именно измерением поляризации и магнитно-ядерной интерференции в образце. В качестве модели рассмотрим простую ситуацию: немагнитную матрицу с примесью d-металлов, к которой можно свести большую часть работ по этой тематике. В качестве примера приведем данные измерений малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов в сплаве CuZn(20) с примесью Ni (1 ат.%).

Образцы и методика измерений. Измерения были выполнены на образцах, вырезанных из одного и того же листа промышленного латунного проката CuZn(20), в котором, как было установлено рентгенофлуоресцентным анализом, содержится примесь Ni (порядка 1 ат.%). Образцы имели форму прямоугольных пластин со следующими размерами: толщина 4 мм, ширина 10 мм, высота 30 мм. Образцы подвергались термической обработке с целью изменения распределения примеси Ni в матрице. Об этом будет сказано ниже. Эксперименты проводились на установке малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов ВЕКТОР [7] (реактор ВВР-М, ПИЯФ, Гатчина), работающей в щелевой геометрии в диапазоне векторов рассеяния $0 < q < 3 \cdot 10^{-1}$ Å^{-1} ($\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'$, где $\mathbf{k}$, $\mathbf{k}'$ – волновые векторы падающих и рассеянных нейтронов). Длина волны в эксперименте составляла $\lambda = 9.2$ Å ($\Delta\lambda/\lambda = 0.25$).

В настоящее время установка оборудована двухкоординатным (2D) позиционно-чувствительным ^{3}He детектором с окном 300×300 мм^2 с пространственным разрешением по каждой координате ≈ 2 мм, эффективностью детектора на данной длине волны порядка 70% и частотными характеристиками электроники на уровне 10^5 Гц [8]. Шаг усреднения интенсивности по координатам X (горизонталь) и Y (вертикаль) 2D-детектора составляет $d = 2$ мм.

[1]e-mail: runov@pnpi.spb.ru

Соответственно в пространстве волновых векторов усреднения составляют ΔQ_x, $\Delta Q_y \approx 2\pi d/\lambda L$, где L – расстояние между образцом и детектором. В данных экспериментах ΔQ_x, $\Delta Q_y = 4.5 \cdot 10^{-4}$ Å^{-1}. Непосредственно перед детектором на специальном планшете-координаторе установлен анализатор поляризации нейтронов. Анализатор с размерами $10 \times 40 \times 45$ мм^3 (ширина, высота и длина по оси пучка) выполнен в виде стопки реманентных (т.е. намагниченных) Fe–Co-суперзеркал. Он может быть программно установлен в любое место перед детектором или выведен из нейтронного пучка. Эффективность анализатора 82%. Поляризация падающих на образец нейтронов, определяемая стандартным образом как $P_0 = (I^+ - I^-)/(I^+ + I^-)$ (где I^+, I^- – интенсивность нейтронов с соответствующим спиновым состоянием по/против относительно направления магнитного поля), составляла $P_0 \approx 94\%$. Эксперименты проводились при комнатной температуре. Измерялись поляризация $P(q \cong 0)$ прошедших через образец нейтронов с анализатором поляризации и магнитно-ядерная интерференция рассеянных нейтронов без анализатора. Оси X, Y не являлись эквивалентными из-за вертикальной щелевой геометрии измерений. Поэтому для увеличения статистики проводилось усреднение по Q_y в диапазоне $\langle \Delta Q_y \rangle = \pm 2.3 \cdot 10^{-3}$ Å^{-1}. Графики, приведенные ниже, построены в зависимости от $q \equiv Q_x$. Интенсивность нейтронов $I^{\pm}$ суммировалась в диапазоне $Y_0 \pm \langle \Delta Q_y \rangle$, где Y_0 – геометрический центр пучка по вертикали. Измерения интерференции проводились в магнитных полях $\mathbf{H}$ в геометрии $\mathbf{P}_0 \| \mathbf{H} \perp \mathbf{Q}_x$. Как известно, разница в рассеянии поляризованных нейтронов $I^{\pm}$ на намагниченном образце, $\Delta(q)$, определяется магнитно-ядерной интерференцией, т.е. фурье-образом кросс-коррелятора произведения ядерной (A) и спиновой (B) плотностей амплитуд рассеяния: $\Delta(q) = I^+(q) - I^-(q) \propto P(A \cdot B)$. В экспериментах было получено распределение $\Delta(q)$ во всей области изменений волнового вектора, $0 \leq q < 2.5 \times 10^{-2}$ Å^{-1}, включая и область прямого пучка, где согласно закону сохранения частиц ($\int \Delta q dq = 0$) величина $\Delta(q)$ меняет знак на противоположный по сравнению с областью рассеяния нейтронов. В данном случае предполагается, что спин-зависимое сечение поглощения нейтронов пренебрежимо мало. Регистрация такой своеобразной картины $\Delta(q)$ стала возможна благодаря хорошим пространственному и частотному разрешениям 2D-детектора. Впервые подобные картины рассеяния были получены нами в работе [9] при исследовании ВТСП-керамики.

Результаты измерений. Экспериментально установлено, что образцы латунного проката CuZn(20) с примесью Ni (1 ат.%) без дополнительной термообработки деполяризуют нейтронный пучок. Деполяризация $D = 1 - P/P_0$ составляет $\approx 30\%$ при измерении в ведущем магнитном поле $H = (1{-}2) \cdot 10^{-3}$ Тл и практически не меняется до полей $H \leq 0.5$ Тл. Нагрев образца до $T \approx 800\,^\circ$C с выдержкой в течение 5 ч и последующим резким охлаждением в воде (т.е. закалка) убирает деполяризацию ($D = 0 \pm 10^{-3}$). Однако последующий отжиг при $T \approx 600\,^\circ$C с выдержкой в течение 5 ч приводит к деполяризации $D = 1{-}2\%$. Понятно, что примесь Ni кластеризуется в образцах и термообработка изменяет этот процесс. Чем больше D, тем больше характерный радиус корреляций R_c между магнитными моментами примеси. Однако получить количественную информацию из факта деполяризации в данном случае практически невозможно. Вопрос о характерном радиусе корреляций примеси Ni в образце и виде коррелятора остается открытым.

На рис. 1 приведены типичные результаты измерений $\Delta(q) = I^+(q) - I^-(q)$ для рассматриваемых образцов. Здесь можно выделить три характерные

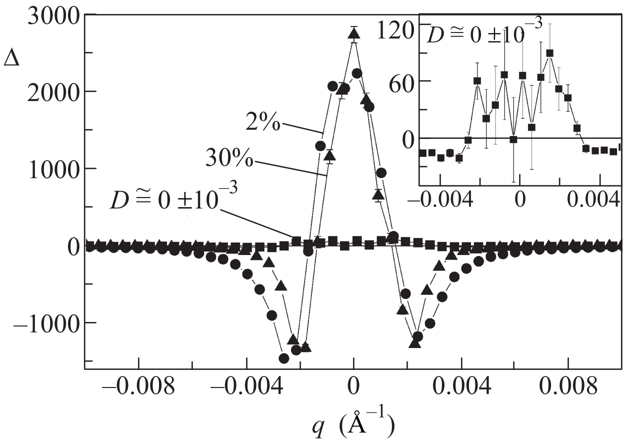

Рис. 1. Зависимости магнитно-ядерной интерференции от переданного волнового вектора в образцах CuZn(20) с примесью Ni (1 ат.%) в поле $H \approx 0.5$ Тл при различной термообработке образцов, что соответствует разной деполяризации D нейтронов в образцах

области:

1) область магнитно-ядерной интерференции, $|q| > 2 \cdot 10^{-3}$ Å^{-1};

2) область интерференции магнитного рассеяния с прямым пучком, $|q| < 1 \cdot 10^{-3}$ Å^{-1};

3) промежуточную область сильного взаимодействия первых двух процессов.

Как видно из рис. 1, характерная картина магнитно-ядерного интерференционного рассеяния наблюдается в своем масштабе (вставка) и для закаленного образца, в котором нет деполяризации нейтронов. Относительная величина эффекта магнитно-ядерной интерференции $P_{ef} = [I^+(q) - I^-(q)]/[I^+(q) + I^-(q)]$, задающая необходимую точность измерений, приведена на рис. 2.

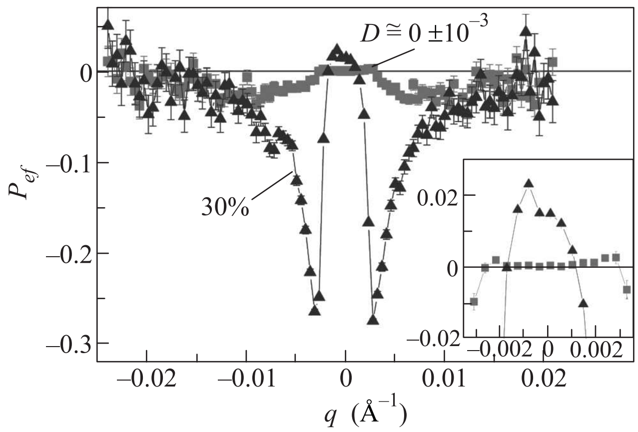

Рис. 2. Зависимости относительной величины магнитно-ядерной интерференции $P_{ef} = [I^+(q) - I^-(q)]/[I^+(q) + I^-(q)]$ от переданного волнового вектора в образцах CuZn(20) с примесью Ni (1 ат.%) в поле $H \approx 0.5$ Тл при различной термообработке образцов, что соответствует разной деполяризации D нейтронов в образцах

Зависимости магнитно-ядерного интерференционного эффекта от переданного волнового вектора q определяются кросс-коррелятором, параметры и вид которого могут быть определены в эксперименте. На рис. 3 приведены зависимости $-\Delta(q)$ в области магнитно-ядерной интерференции, $|q| > 2 \cdot 10^{-3}$ Å^{-1}, для рассматриваемых образцов, измеренные в поле $H \approx 0.5$ Тл (зависимости инвертированы по знаку исключительно для удобства работы с графиками). Значения величин и распределение $\Delta(q)$ при данной температуре, конечно, зависят от приложенного магнитного поля. Однако в этом эксперименте величины $\Delta(q)$ были практически на уровне фона в полях $H < 0.02$ Тл и почти не менялись в диапазоне $0.15 < H \leq 0.5$ Тл. Экспериментальные значения $\Delta(q)$ удовлетворительно описываются выражением $\Delta(q) = A/[q^2 + (1/R_c)^2]^2$, где A – параметр, R_c – характерный радиус корреляций. Для магнитного рассеяния такая зависимость соответствует рассеянию, описываемому коррелятором спинов $\langle S_i S_j \rangle$, который изменяется в координатном пространстве в зависимости от расстояния r как $\langle S_i(0) S_j(r) \rangle \propto \exp(-r/R_c)$. В данном случае рассеяние определяется магнитно-ядерным кросс-коррелятором, т.е. его величина не будет соответствовать магнитному рассеянию. Однако зависимость от q и характерный радиус R_c благодаря условию интерференции должны соответствовать магнитному рассеянию при данных условиях измерений.

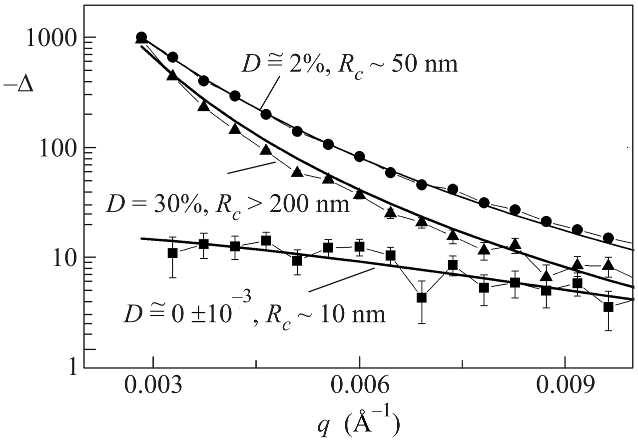

Рис. 3. Зависимости $-\Delta(q)$ в области магнитно-ядерной интерференции, $|q| > 2 \cdot 10^{-3}$ Å^{-1}, для образцов CuZn(20) с примесью Ni (1 ат.%) в поле $H \approx 0.5$ Тл с различной термообработкой (зависимости инвертированы по знаку исключительно для удобства работы с графиками). Сплошные линии – результаты подгонки

Анализ измерений и обсуждение. Итак, в эксперименте определены вид кросс-коррелятора и характерные радиусы корреляции однопроцентной примеси Ni в немагнитной матрице CuZn(20). Показано, что характерный радиус корреляций в зависимости от термообработки лежит в диапазоне $100 < R_c < 5000$ Å, а вид кросс-коррелятора, определяющего магнитно-ядерную интерференцию, удовлетворительно описывается экспоненциальным законом $\exp(-r/R_c)$. Из эксперимента следует, что немагнитная матрица с почти равномерным распределением 1% примеси Ni (в закаленном образце $R_c \approx \approx 100$ Å, что примерно в два раза превышает статистически равномерное распределение примеси) обладает метамагнитными свойствами, т.е. средним магнитным моментом, в полях $H \approx 0.5$ Тл при комнатной температуре.

В заключение сравним различные методы анализа ферромагнитных корреляций магнитных примесей в немагнитных матрицах с помощью малоуглового рассеяния нейтронов. Прежде всего, выделить вклад магнитного рассеяния без использования поляризованных нейтронов практически невозможно. Анализ поляризации в прошедшем пучке ($q \approx 0$) в практически нулевом магнитном поле, безусловно, самый экспрессный метод качественной оценки ферромагнитных корреляций. Однако получить с его помощью вид коррелятора и характерные параметры практически невозможно. Нужно привлекать много дополнительных параметров и использовать модельные расчеты. Более того, этот метод работает тем эффективнее, чем больше по размеру магнитные неоднородности, скажем ферромагнитные домены. В случае магнитных корреляций порядка сотни ангстрем возможен и эффективен анализ поляризации рассеянных нейтронов, которые, как известно [10], при магнитном рассеянии меняют знак поляризации. Однако этот метод тоже является качественным. С его помощью можно получить только разность количеств рассеянных нейтронов со своей поляризацией на образце с магнитным вкладом в рассеяние примеси и рассеянием без учета примеси. В рассматриваемом же нами классе экспериментов это практически невозможно сделать. Как показал данный эксперимент, экспрессный анализ деполяризации в исследуемых образцах с измерением магнитно-ядерной интерференции $\Delta(q)$ во всем диапазоне $0 \leq |q| \leq 2 \cdot 10^{-3}$ Å^{-1} позволяет определить вид функции распределения и характерные параметры корреляций. В дальнейшем авторы планируют применить этот метод при изучении магнетизма, обусловленного примесями и вакансиями в наноструктурированных оксидах и магнитных полупроводниках.

Авторы благодарят сотрудников Отдела детекторов ОТД ПИЯФ, возглавляемого А.Г. Крившичем, и сотрудников отдела электроники ОАЭР ПИЯФ, возглавляемого В.А. Соловьем, за создание 2D нейтронного детектора с хорошими параметрами, позволившими выполнить представленные исследования, а также персонально А.В. Надточия за придетекторную электронику, программистов И.А. Красноводу и М.Р. Колхидашвили. Авторы признательны А.Е. Совестнову за проведение рентгенофлуоресцентного анализа образцов и А.В. Ковалеву за помощь в работе.

1. V. Fernandes, P. Schio, A. J. de Oliveira et al., J. Phys: Condens. Matter **22**, 216004 (2010).
2. V. Fernandes, R. J. O. Mossanek, P. Schio et al., Phys. Rev. B **80**, 035202 (2009).
3. V. Fernandes, P. Schio, R. J. O. Mossanek et al., Electrochemical and Solid-State Letters **14**(3), 9 (2011).
4. A. Sundaresan, R. Bhargavi, N. Rangarajan et al., Phys. Rev. B **74**, 161306(R) (2006).
5. B. Vodungbo, Y. Zheng, F. Vidal et al., Appl. Phys. Lett. **90**, 062510 (2007).
6. P. R. L. Keating, D. O. Scanlon, and G. W. Watson, J. Phys: Condens. Matter **21**, 405502 (2009).
7. С. В. Григорьев, О. А. Губин, Г. П. Копица и др., Препринт ПИЯФ-2028, Гатчина, 1995.
8. В. А. Андреев, Г. А. Ганжа, Е. А. Иванов и др., ФТТ **52**(5), 964 (2010).
9. G. Gordeev, A. Okorokov, V. Runov et al., Physica B **234–236**, 837 (1997).
10. С. В. Малеев, УФН **172**(6), 617 (2002).