Письма в ЖЭТФ, том 54, вып. 7, стр. 365 - 368 10 октября 1991 г.

ВЛИЯНИЕ ФЛУКТУАЦИЙ МАГНИТНЫХ МОМЕНТОВ МИКРОЧАСТИЦ НА ВРЕМЕННЫЕ ЗАВИСИМОСТИ МЕССБАУЭРОВСКОГО РАССЕЯНИЯ

Е.А.Попов

Физико-технический институт
420029, г. Казань.

Поступила в редакцию 2 июля 1991 г.

Получены временные зависимости рассеянного мессбауэровского излучения на ядрах Fe^{57} в составе суперпарамагнитной частицы типа "легкая ось". В рамках модели Кубо-Андерсона показано, что форма кривых определяется средней частотой флуктуаций магнитного момента микрочастицы.

Известно, что SEDM-методика мессбауэровской спектроскопии [1] использовалась для изучения флуктуационных процессов (ФП) в суперпарамагнитных частицах (СПЧ) гетита FeOOH [2]. Суть методики заключается в селективном возбуждении γ-резонансного перехода сверхтонкой структуры (СТС) ядра и частотном анализе рассеянных γ-квантов. С ее помощью показано, что для микрочастиц гетита скорее всего справедлива флуктуационная модель Кубо-Андерсона (МКА).

Не менее важную информацию о характере ФП в суперпарамагнитном образце можно извлечь из временного анализа рассеянного излучения в геометрии SEDM. Существующие экспериментальные методики позволяют сделать это [3-5]. В качестве первого шага, в данной работе рассмотрено влияние флуктуационных процессов на временные зависимости рассеянного излучения (ВЗРИ) в рамках МКА. Эта модель справедлива для СПЧ типа "легкая ось". Для получения временных зависимостей применяется формализм матрицы плотности в представлении Шредингера. Он был использован для изучения влияния ФП и внешнего радиочастотного поля на мессбауэровские спектры поглощения и рассеяния [6,7]. В рамках такого подхода рассматривается выражение для заселенности конечного состояния системы "ядро+электронная подсистема (ЭП)+γ-квант":

$$P(\omega_1, t) = -2\mathrm{Im}\sum \rho^{ge(\pm)}_{n_{2g}n_{2e}}(\omega_2, \omega_1, t)V^{eg}_{n_{2e}n_{2g}}/h, \tag{1}$$

где ρ- оператор матрицы плотности системы, V - оператор взаимодействия ядра с γ-квантом; g, e означают подуровни СТС ядра основного и возбужденного состояния, $\pm$ - состояния ЭП, связанные с направлением вектора магнитного момента микрочастицы. Матричные элементы оператора ρ находятся методом фурье-образов из системы восьми уравнений Лиувилля, усредненных по состояниям теплового резервуара [8]:

$$\frac{d}{dt}\rho^{ij(\pm)}_{n_{2i}n_{1i},n_{2j}n_{1j}} = -\frac{i}{h}[H,\rho]^{ij(\pm)}_{n_{2i}n_{1i},n_{2j}n_{1j}} - \frac{1}{\tau}\rho^{ij(\pm)}_{n_{2i}n_{1i},n_{2j}n_{1j}} + \frac{1}{\tau}\rho^{ij(\mp)}_{n_{2i}n_{1i},n_{2j}n_{1j}} \tag{2}$$

с начальными условиями $\rho^{ij(\pm)}_{n_{2i}n_{1i},n_{2j}n_{1j}}(0) = 0$. В (1), (2) n_1, n_2 - числа заполнения падающего и рассеянного γ-квантов, $1/\tau$ - средняя частота флуктуаций между состояниями электронной подсистемы с $S = \pm 1/2$.

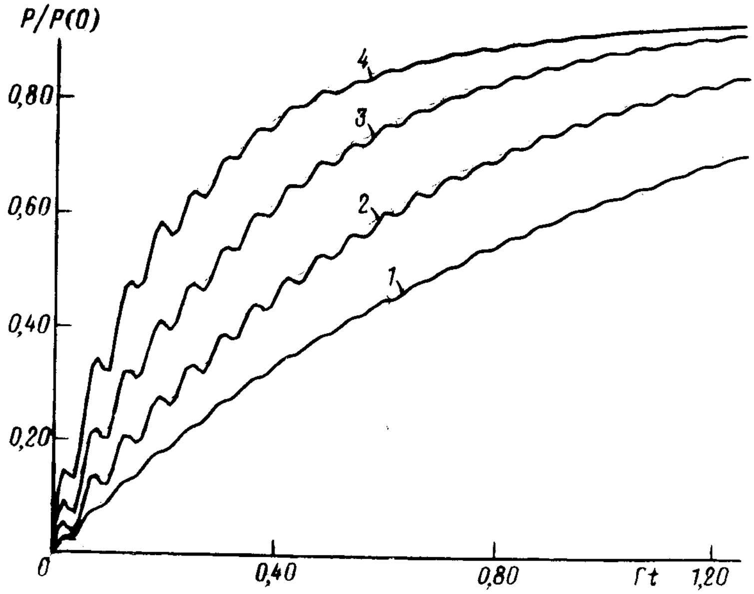

Рис. 1. Временные зависимости рассеянного излучения в зависимости от величины $1/\tau$: *1* - 0,1Г, *2* - Г, *3* - 2Г, *4* - 4Г

Так как во временных экспериментах приходящие на детектор γ-кванты не различаются по частотам, то происходит усреднение $P(\omega_1, t)$ по фазе рассеянного излучения. Поэтому на временных зависимостях возникают осцилляции, обусловленные переходом ядра в суперпозиционное состояние только при поглощении падающего излучения. Кроме того, меняется наблюдаемая скорость распада возбужденного ядерного состояния за счет пуассоновской вероятности $\exp(-t/\tau)$.

Подставляя $\rho^{ge(\pm)}_{n_{2g} n_{2e}}$ из (2) в (1), получим выражение для заселенности конечного состояния системы:

$$P(\omega_1, t) \sim \mathrm{Re} \sum d^{(L)}_{r_1 M}(\vartheta_1) \chi^{(in)}_{r_1 r} d^{(L)}_{rM}(\vartheta_1) d^{(L)}_{s_1 M_1}(\vartheta_2) \chi^{(sc)}_{s_1 s} d^{(L)}_{sM_1}(\vartheta_2) \times$$

$$\times\, C^2(I_e L I_g, m_e M) C^2(I_e L I_g, m_e M_1) \Phi_{egg_1}(\omega_1, t). \qquad (3)$$

В (3) $d^{(L)}$ - функции Вигнера, $C(...)$ - коэффициенты Клебша-Гордона; $\chi^{(in)}$, $\chi^{(sc)}$ - поляризационные матрицы плотности падающего и рассеянного излучения. Функция Φ_{egg_1} имеет вид:

$$\Phi_{egg_1} = \sum_{\alpha=\pm 1} F_1(\alpha\Delta, a_{eg_1}) + \sum_{\beta=\pm 1} F_2(\alpha\Delta, \beta a_{eg_1}) + F_3(\Delta, \alpha a_{gg}, \beta a_{eg_1}) + F_4(\Delta, \alpha a_{eg}, \beta a_{eg_1}). \qquad (4)$$

В (4) функция F_3 наряду с F_4 вносит основной вклад в формирование осцилляций на временных зависимостях (3) и равна

$$F_3 = F_{30}(1 - \exp(ft)), \ \ F_{30} = S/H, \ \ H = -2i a_{eg} a_{eg_1} h_2 h_3 f, \ \ S = h_1 K + L,$$

$$h_1 = \Delta - a_{eg} - i\Gamma/2, \ \ h_2 = h_1 - a_{gg_1}, \ \ h_3 = h_1 + a_{gg_1}, \ \ f = i(\Delta - a_{eg_1}) + \Gamma/2 + 1/\tau,$$

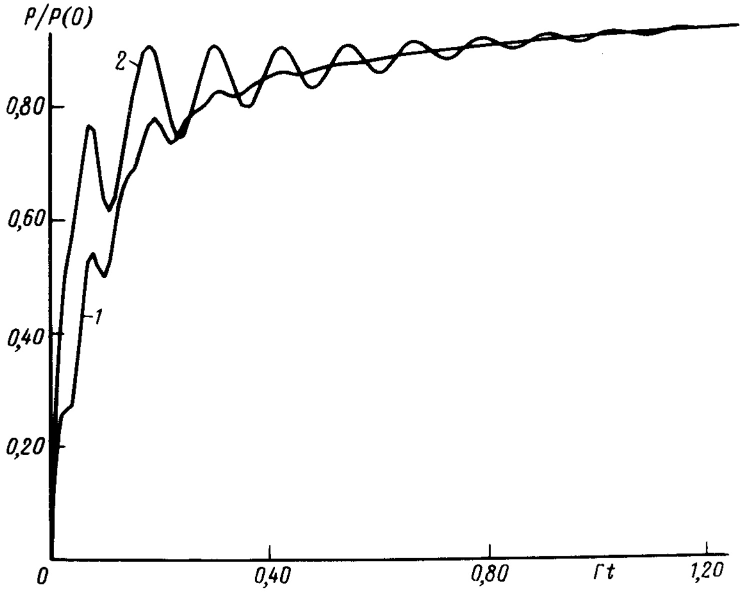

Рис. 2. Временные зависимости рассеянного излучения в зависимости от величины $1/\tau$: *1* - 8,6Г, *2* - 17Г

$$L = \omega_{gg_1}(a_{eg}\omega_{eg_1} + \omega_{eg}a_{eg_1}) - i(\omega_{eg}^2 - \omega_{eg_1}\omega_{gg_1} - a_{eg}a_{eg_1})/\tau + (a_{eg_1} - a_{eg})/\tau^2 + i/\tau^3,$$

$$K = a_{eg}a_{eg_1} + \omega_{eg}\omega_{eg_1} - i(a_{eg} - a_{eg_1})/\tau + 1/\tau^2. \qquad (5)$$

В (4), (5) Δ означает допплеровский сдвиг падающего излучения, ω_{ij} характеризует величину зеемановской энергии соответствующего перехода СТС ядра. Величина a_{ij} связана с ω_{ij} соотношением $\sqrt{\omega_{ij}^2 - 1/\tau^2}$ и отражает влияние ФП на величину сверхтонкого поля на ядре. Г-естественная ширина линии γ-излучения.

Временные зависимости рассеянного излучения проанализированы на примере ядра $Fe^{57}(I_g = 1/2, I_e = 3/2)$ в суперпарамагнитном образце. Считается, что экспериментальные кривые получаются с помощью мессбауэровской спектроскопии совпадений. Поэтому в (3) проведено интегрирование по ϑ_1, ϑ_2 и усреднение по лоренцевой функции распределения падающего излучения. Кроме того, предполагается, что падающее и рассеянное излучение неполяризовано.

Пусть селективно возбуждается γ-переход $-1/2 \to -3/2$. Для численных расчетов берутся два случая: 1) $\Delta = \omega_{-3/2-1/2}$, 2) $\Delta = a_{-3/2-1/2}$. Анализ временных зависимостей показывает, что для 1), 2) они практически совпадают вплоть до $1/\tau \simeq 17Г$, так как в этом интервале изменения средней частоты флуктуаций $a_{-3/2-1/2} \simeq \omega_{-3/2-1/2}$. Начиная с $1/\tau \simeq 0,1Г$ на ВЗРИ появляются осцилляции с частотой $\Omega_1 = 2\omega_{-3/2-1/2}$. Это происходит потому, что при поглощении γ-кванта под влиянием флуктуаций направления вектора магнитного момента СПЧ ядро Fe^{57} переходит из суперпозиционного состояния с $m_g = \pm 1/2$ в суперпозиционное состояние с $m_e = \pm 3/2$. Они наиболее ярко выражены при $1/\tau \simeq Г$ и при дальнейшем росте $1/\tau$ искажаются за счет увеличения наблюдаемой скорости распада возбужденного ядерного состояния (рис.1).

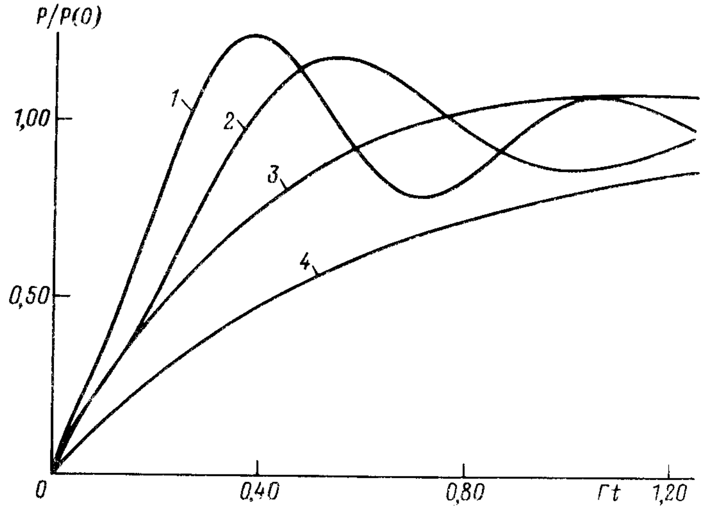

Рис. 3. Временные зависимости рассеянного излучения (случай 2) в зависимости от величины $1/\tau$: *1* - 54Г, *2* - 54,4Г, *3* - 54.7Г, *4* - 55Г

Когда $1/\tau \geq |\omega_{1/2-1/2}| = 8,6\Gamma$, уменьшение сверхтонкого поля на ядре приводит к тому, что частота γ-перехода $-1/2 \to 1/2$ равна частоте γ-перехода в отсутствии поля. Поэтому на временных зависимостях могут появляться осцилляции с частотой $\Omega_2 = \omega_{-3/2-1/2}$. Они несущественны при $8{,}6\Gamma \leq 1/\tau \simeq 10\Gamma$, так как обусловлены нерезонансным характером возбуждения и большой шириной линии γ-перехода. При дальнейшем увеличении $1/\tau$ ширина линии уменьшается $\left(\Gamma_1 = \Gamma + 1/\tau - \sqrt{1/\tau^2} - \omega^2_{1/2-1/2}\right)$ и осцилляции с частотой Ω_2 становятся сравнимы по величине с осцилляциями с частотой Ω_1, а при $1/\tau \simeq 17\Gamma$ будут доминировать (рис.2). При $1/\tau > 17\Gamma$ в случае 1) частота Ω_2 не меняется. В случае 2) частота $\Omega_2 = a_{-3/2-1/2}$ постепенно уменьшается и после того, как СТС ядра Fe^{57} полностью исчезает $\left(1/\tau \geq \omega_{-3/2-1/2}\right)$, получаются обычные временные зависимости в отсутствии флуктуационных процессов (рис.3).

Необходимо отметить, что результаты расчетов и их анализ справедливы для суперпарамагнетиков с однородным распределением микрочастиц по размерам. Способ их приготовления описан в [9].

В заключение автор выражает благодарность Вагизову Ф.Г. и Манапову Р.А. за полезные обсуждения.

1. Balko B. Phys. Rev. B, 1986, 33, 7421.

2. Зелепухин М.В., Седов В.Е., Смирнов Г.В. и др. Письма в ЖЭТФ, 1989, 49, 143.

3. Hamill D.W., Hoy G.R. Phys. Rev. Lett., 1968, 21, 724.

4. Смирнов Г.В., Швыдько Ю.В., Колотов О.С. и др. ЖЭТФ, 1984, 86, 1495.

5. Arthur J., Brown G.S., Brown D.E., Ruby S.L. Phys. Rev. Lett., 1989, 63, 1629.

6. Викман Х., Вертхейм Г. Химические применения мессбауэровской спектроскопии. М.: Мир, 1970, 437.

7. Митин А.В. Опт. и спектр., 1982, 53, 288.

8. Блум К. Теория матрицы плотности. М.: Мир, 1983.

9. Петров А.Е., Костичев А.Н., Петинов В.И. ФТТ, 1973, 15, 2927.