

Сдвиг релаксационно-стимулированных резонансов в мессбауэровских спектрах поглощения при наложении постоянного магнитного поля

А. М. Афанасьев, М. А. Чуев¹⁾, Ю. Гессе*

Физико-технологический институт РАН, 117218 Москва, Россия

*Институт металлофизики и ядерной физики, Технический университет Брауншвайга, D-38106 Брауншвайг, Германия

Поступила в редакцию 6 апреля 2001 г.

Обнаружены новые особенности ранее предсказанных релаксационно-стимулированных резонансов, проявляющихся в мессбауэровских спектрах поглощения наномагнетиков при воздействии внешнего высокочастотного поля: при наложении слабого постоянного магнитного поля должен наблюдаться сдвиг резонансов в сторону более низких частот. В упрощенной релаксационной модели получены аналитические выражения для резонансных частот в зависимости от напряженности постоянного поля. Этот эффект расширяет возможности экспериментального наблюдения предсказанных резонансов, поскольку настройку на резонанс можно осуществлять не только изменением радиочастоты, но и вариацией амплитуды переменного поля и напряженности постоянного поля.

PACS: 75.60.-d, 76.80.+y

Влияние внешнего радиочастотного (РЧ) поля на наномагнетики приводит к изменениям магнитных моментов как отдельных частиц, так и образца в целом. В большинстве случаев временные траектории магнитных моментов отдельных частиц во внешнем РЧ поле являются детерминированными, то есть в любой момент времени величина и направление магнитного момента частицы точно определены, что, в частности, проявляется в мессбауэровских спектрах поглощения в виде коллапса сверхтонкой магнитной структуры и образования РЧ сателлитов [1]. Как было показано в работах [2–4], при определенных амплитудах РЧ поля происходят качественные изменения траекторий магнитного момента, они становятся не детерминированными, а стохастическими, то есть величина и направление магнитного момента частицы больше не являются строго заданными, а определяются лишь некоторыми вероятностными характеристиками. В этом случае были предсказаны качественно новые типы резонансных явлений в мессбауэровских спектрах поглощения на частотах РЧ поля, связанных условиями параметрического резонанса с частотами компонент магнитной сверхтонкой структуры [3, 4]. При этом наиболее яркий эффект должен проявляться в виде резкого, резонансного сужения отдельных компонент сверхтонкой структуры, на частоты которых настроена резонансная частота РЧ поля:

$$\omega_{rf} = \frac{|M\omega_e - m\omega_g|}{n}, \quad (1)$$

где n – целое число, m и M – проекции спина ядра на направление сверхтонкого поля, а ω_g и ω_e – частоты ядерного магнитного резонанса в основном и возбужденном состояниях.

Нетривиальный характер этого явления обусловлен тем, что возбужденное состояние ядра отстоит по энергии от основного на величину, превышающую расщепления ядерных уровней более чем на 10 порядков и, несмотря на это обстоятельство, внешнее РЧ поле когерентно связывает сверхтонкие подуровни ядра в основном и возбужденном состояниях только за счет релаксационных процессов. Резонансы типа (1) были названы релаксационно-стимулированными резонансами, поскольку они могут наблюдаться только в тех случаях, когда в процессе перемагничивания образца существенную роль играют релаксационные процессы.

Релаксационные эффекты проявляют себя главным образом на тех временных участках траектории, когда напряженность поля достигает своего максимального значения, что реализуется дважды за период РЧ поля. В экспериментах четко обнаружено сильное влияние РЧ поля с амплитудой порядка 10 Э на форму мессбауэровских спектров (см. [5] и ссылки в ней). Если наряду с РЧ полем приложить слабое постоянное магнитное поле, напряженность которого сравнима с амплитудой РЧ поля, то нетрудно реализовать ситуацию, когда стохастическое по-

¹⁾e-mail: chuev@ftian.oivta.ru

ведение временных траекторий магнитного момента будет иметь место не дважды, а всего один раз за период. В этом случае естественно ожидать появления новых особенностей в ранее предсказанных резонансных эффектах. Выделенные выше ситуации со стохастическим поведением отдельных наночастиц представляют интерес не только для мессбауэровской спектроскопии, но и для теории магнетизма в целом. Именно в этих ситуациях должно проявляться необычное поведение и в магнитных свойствах системы, а именно, петли гистерезиса приобретают нестандартный вид типа кривых, изображенных на рис.1. Такое anomальное поведение для магнитной системы частиц Стонера – Вольфарта было отмечено

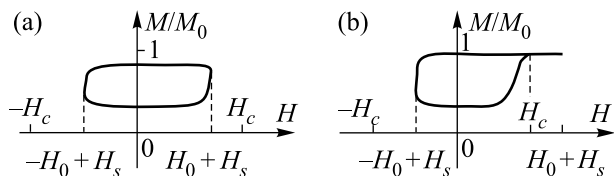


Рис.1. Кривые намагничивания частиц Стонера – Вольфарта в РЧ поле с амплитудой H_0 и постоянном магнитном поле с напряженностью H_s : (а) $H_s + H_0 \leq H_c$; (б) $H_s + H_0 > H_c$

но еще в работе [2]. В последнее время этот вопрос приобрел особый интерес, так как аналогичные особенности были предсказаны для классических ферромагнетиков с доменной структурой (см. [6] и ссылки в ней).

Будем рассматривать образец как ансамбль однодоменных ферромагнитных частиц с намагниченностью M_0 и аксиально-симметричной магнитной анизотропией, энергию которой E_{an} будем предполагать достаточно большой (так называемая модель Стонера – Вольфарта [7]). Тогда каждая частица в отсутствие внешнего магнитного поля может находиться лишь в двух состояниях одинаковой энергии с противоположными направлениями магнитного момента частицы вдоль оси легчайшего намагничивания (рис.2а). При наложении внешнего магнитного поля локальные минимумы энергии смещаются, а при превышении напряженности поля некоторого критического значения H_c остается лишь один, абсолютный минимум энергии, и направление магнитного момента частицы становится строго определенным.

Состояния в локальных минимумах связаны между собой релаксационными процессами, описываемыми вероятностями переходов p_{12} и p_{21} (см. рис.2б), которые оказывают сильное влияние на форму мессбауэровского спектра [2]. В случае, когда отклоне-

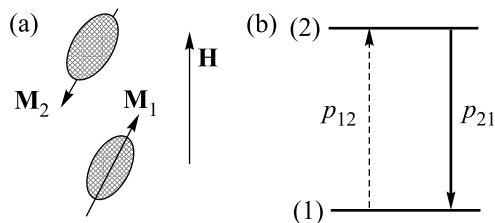


Рис.2. Равновесные состояния частицы с разными направлениями магнитного момента M во внешнем магнитном поле H (а) и схема релаксационных переходов между этими состояниями в модели ОЛР (б)

нием направления магнитного момента частицы от оси легчайшего намагничивания можно пренебречь, и сверхтонкое поле на ядре H_{hf} в процессе релаксации может лишь менять свое направление на обратное, для сечения поглощения гамма-кванта под действием РЧ поля имеем

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_a \Gamma_0^2}{4} \sum_{\alpha} |C_{\alpha}|^2 \varphi_{\alpha}(\omega), \quad (2)$$

где $\alpha = (M, m)$, коэффициенты C_{α} определяют интенсивности соответствующих сверхтонких переходов, σ_{α} – эффективная толщина поглотителя, Γ_0 – ширина уровня возбужденного состояния ядра и

$$\varphi_{\alpha}(\omega) = \frac{1}{\Gamma_0 T_{rf}} \int_0^{T_{rf}} dt \int_t^{\infty} dt' \langle W(t) | e^{i\tilde{\omega}(t'-t)} \hat{G}_{\alpha}(t, t') | 1 \rangle + \text{к.с.} \quad (3)$$

Здесь $\tilde{\omega} = \omega + i\Gamma_0/2$, $T_{rf} = 2\pi/\omega_{rf}$,

$$\hat{G}_{\alpha}(t, t') = \hat{T} \exp \left[\int_t^{t'} dt'' (-i\tilde{\omega}_{\alpha} - \hat{P}(t'')) \right], \quad (4)$$

$$i\tilde{\omega}_{\alpha} + \hat{P}(t) = \begin{pmatrix} i\omega_{\alpha} + p_{12}(t) & -p_{12}(t) \\ -p_{21}(t) & i\omega_{\alpha} + p_{21}(t) \end{pmatrix}, \quad (5)$$

где \hat{T} – оператор хронологического упорядочения, $\omega_{\alpha} = M\omega_e - m\omega_g$, $\omega_{e,g} = g_{e,g}\mu_N H_{hf}$, μ_N – ядерный магнетон, $g_{g,e}$ – ядерный g -фактор для основного и возбужденного состояний ядра, соответственно, а вектор заселенности энергетических состояний $\langle W(t) |$ полностью определяется процессом релаксации:

$$\frac{d\langle W(t) |}{dt} = -\langle W(t) | \hat{P}(t). \quad (6)$$

Подробный вывод формул (2)–(6) можно найти в [2].

Выражение (2) преобразуется к более простой форме следующего вида (см. [3]):

$$\varphi_\alpha(\omega) = \frac{1}{\Gamma_0 T_{rf}} \langle |A_\alpha(\omega)| \frac{1}{1 - e^{i\omega T_{rf}} \hat{G}_\alpha(0, T_{rf})} \rangle \times \\ \times |B_\alpha(\omega)\rangle + \Delta\varphi_\alpha(\omega) + \text{к.с.}, \quad (7)$$

где

$$\langle A_\alpha(\omega) | = \int_0^{T_{rf}} dt \langle W(t) | e^{i\omega(T_{rf}-t)} \hat{G}_\alpha(t, T_{rf}), \quad (8)$$

$$|B_\alpha(\omega)\rangle = \int_0^{T_{rf}} dt e^{i\omega t} \hat{G}_\alpha(0, t) |1\rangle, \quad (9)$$

$$\Delta\varphi_\alpha(\omega) = \int_0^{T_{rf}} dt \int_t^{T_{rf}} dt' \langle W(t) | e^{i\omega(t'-t)} \hat{G}_\alpha(t, t') |1\rangle. \quad (10)$$

Для расчета спектра поглощения необходимо задать динамику магнитной системы, а именно определить зависимости от времени релаксационных параметров $p_{12}(t)$ и $p_{21}(t)$. В модели Стонера – Вольфарта эти зависимости определяются уравнением

$$p_{12}(t) = p_0 \exp(-U_{12}(t)/k_B T), \quad (11)$$

где $U_{12}(t)$ – величина энергетического барьера, который надо преодолеть частице для перехода из состояния (1) в состояние (2), p_0 – некая константа, T – температура. Аналогичная формула имеет место для $p_{21}(t)$. Величины барьеров рассчитываются по схеме, предложенной еще в работе [7], и полностью определяются действующим на частицу внешним магнитным полем. В нашем случае

$$H(t) = H_0 \cos(\omega_{rf} t) + H_s, \quad (12)$$

где H_s – напряженность постоянного поля, а H_0 – амплитуда РЧ поля. По формулам (2)–(12) можно провести конкретные расчеты спектра поглощения [2], однако эти формулы мало пригодны для какого-либо качественного анализа.

Обратимся к упрощенной релаксационной модели, в которой будем пренебрегать релаксационными переходами с нижнего энергетического уровня на верхний, и также будем считать, что сам релаксационный процесс локализован в моменты времени, соответствующих максимумам напряженности РЧ поля (при условии, что $H_s + H_0 \leq H_c$). Соответствующие точки показаны на рис.1 штриховыми линиями. Эта так называемая модель односторонней и локализованной релаксации (ОЛР) приводит к резкому упрощению

общих формул [4]. Прежде всего, эта модель позволяет перейти от дифференциальных релаксационных параметров $p_{12}(t)$ и $p_{21}(t)$ к интегральным характеристикам

$$r_k = \exp \left[-2 \int_{t_k - t_\varepsilon}^{t_k} p_k(t) dt \right], \quad (13)$$

которые определяют вероятность для частицы остаться в том же состоянии при прохождении точек с максимальной напряженностью РЧ поля ($t_k = kT_{rf}/2$, $k = 1, 2$ и t_ε – малый по сравнению с периодом РЧ поля интервал времени). Обоснование формулы (13) можно найти в работе [4].

В модели ОЛР для интервалов времени между точками локализации процесса релаксации

$$\hat{G}_\alpha(t, t') = \hat{g}_\alpha(t' - t) = \begin{pmatrix} e^{-i\omega_\alpha(t'-t)} & 0 \\ 0 & e^{i\omega_\alpha(t'-t)} \end{pmatrix}, \\ (t, t') \in (t_k, t_{k+1}). \quad (14)$$

В малых окрестностях точек t_k при вычислении функции $\hat{G}_\alpha(t, t')$ можно пренебречь сверхтонкими взаимодействиями и оставить только релаксационный оператор \hat{P} . Более того, в выбранной модели односторонней релаксации операторы $\hat{P}(t)$ коммутируют в различные моменты времени, что и позволяет выразить соответствующие функции $\hat{G}_\alpha(t, t')$ через интегральные характеристики релаксационного процесса r_k :

$$\hat{G}_\alpha(t_1 - t_\varepsilon, t_1 + t_\varepsilon) = \hat{R}_1 = \begin{pmatrix} r_1 & q_1 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \\ \hat{G}_\alpha(t_2 - t_\varepsilon, t_2 + t_\varepsilon) = \hat{R}_2 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ q_2 & r_2 \end{pmatrix}, \quad (15)$$

где $q_k = 1 - r_k$. Для произвольных моментов времени t и t' функция $\hat{G}_\alpha(t, t')$ легко находится с учетом свойства \hat{T} -произведения. Используя выражения (14) и (15), нетрудно выписать в явной форме все операторы в формулах (7)–(10) и рассчитать спектр поглощения при произвольных частотах РЧ поля, а также для произвольных значений параметров r_1 и r_2 (см. рис.3).

В случае, когда $H_s + H_0 \leq H_c$ и стохастическое перемагничивание имеет место на обоих концах петли гистерезиса, легко находим, что

$$\hat{G}(0, T_{rf}) = \begin{pmatrix} r_1 e^{-i\omega_\alpha T_{rf}} + q_1 q_2 & q_1 r_2 \\ q_2 e^{i\omega_\alpha T_{rf}} & r_2 e^{i\omega_\alpha T_{rf}} \end{pmatrix}. \quad (16)$$

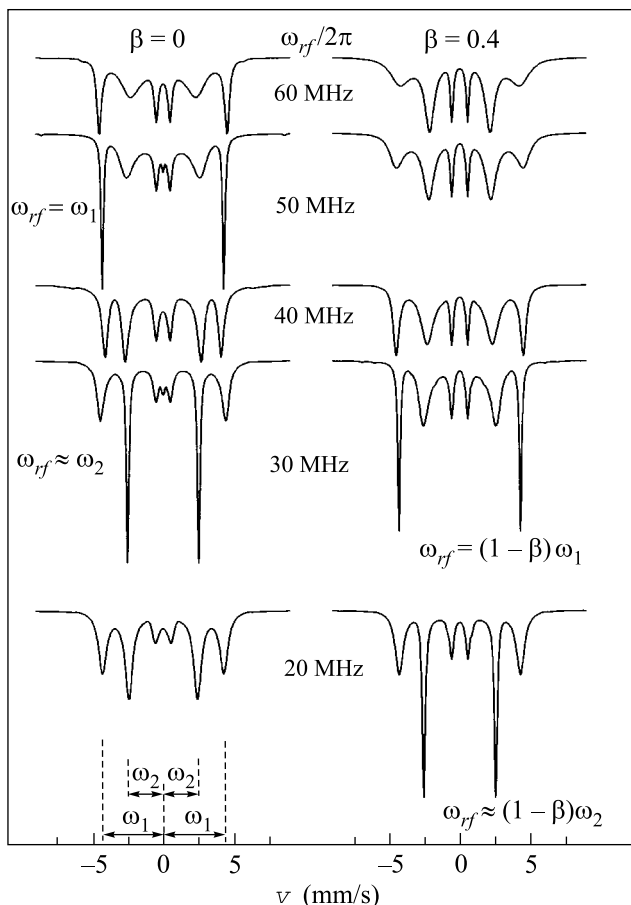


Рис.3. Мессбауэровские спектры в постоянном и РЧ магнитных полях в модели ОЛР при $q = 0.3$ в зависимости от частоты РЧ поля для случаев: $H_s + H_0 = H_c$ ($\beta = 0$) и $H_s + H_0 > H_c$ ($\beta = 0.4$). Расчеты спектров выполнены для ядер ^{57}Fe , $\omega_{3/2,1/2} = \omega_1 = 2\pi \times 50$ МГц, и неполяризованного пучка γ -квантов, перпендикулярного направлению внешнего РЧ поля

Для высоких частот РЧ поля, $\omega_{rf} \gg \Gamma_0$, член $\Delta\phi_\alpha$ в выражении (7) дает лишь малую и плавно меняющуюся добавку [3], так что при определении формы отдельных линий спектра ею можно пренебречь. (Отметим, что при низких частотах этот член будет определяющим.) С учетом этого нетрудно увидеть из выражения (7), что ширины и положения линий спектра будут определяться уравнением

$$\det(\hat{1} - e^{i\tilde{\omega}T_{rf}} \tilde{G}_\alpha(0, T_{rf})) = 0, \quad (17)$$

которое в нашем случае сводится к уравнению

$$(1 - r_1 e^{i(\tilde{\omega} - \omega_\alpha)T_{rf}})(1 - r_2 e^{i(\tilde{\omega} + \omega_\alpha)T_{rf}}) - q_1 q_2 e^{i\tilde{\omega}T_{rf}} = 0. \quad (18)$$

Отметим, что в отсутствие постоянного поля ($H_s = 0$) $r_1 = r_2$, и этот случай был подробно проанализирован

в работе [4], где было обнаружено, что при частотах РЧ поля, удовлетворяющих условию (1), в спектре поглощения должны наблюдаться линии с естественной шириной Γ_0 , в то время как при отходе от резонансных частот линии спектра сильно уширяются. Нетрудно увидеть, что в точном резонансе (1) узкие линии естественной ширины остаются и в случае, когда приложено постоянное магнитное поле, то есть при $r_1 > r_2$. Действительно, при выполнении условия (1) дисперсионное уравнение (18) сводится к уравнению вида

$$(1 - e^{i\tilde{\omega}T_{rf}})(1 - r_1 r_2 e^{i\tilde{\omega}T_{rf}}) = 0. \quad (19)$$

При этом в спектре поглощения должны наблюдаться компоненты с естественной шириной линии Γ_0 в положениях ω_α , и нетрудно показать, что эти линии имеют большую интенсивность (которая к тому же увеличивается с ростом H_s), а при отходе от резонанса эти линии заметно уширяются. Характерные особенности резонансов этого типа продемонстрированы в левой серии спектров на рис.3, где отчетливо видно резонансное поведение внешних и внутренних линий спектра на частотах $\omega_{rf} = \omega_{3/2,1/2} = \omega_1$ и $\omega_{rf} = \omega_{1/2,1/2} = \omega_2$, соответственно.

Естественно, эти результаты справедливы только при условии, что $H_s + H_0 \leq H_c$, и в этом случае приложение постоянного поля не сдвигает частоты ранее предсказанных релаксационно-стимулированных резонансов. В более сильных полях, когда $H_s + H_0 \geq H_c$ (но $H_0 - H_s < H_c$), ситуация резко меняется, и это видно уже из формы петель гистерезиса (см. рис.1b). В данном случае стохастическое перемагничивание происходит лишь один раз за период РЧ поля, и в формуле (15) следует положить $r_2 = 0$, $q_2 = 1$, а $t_2 = T_{rf} \{1 - \arccos[(H_c - H_s)/H_0]/2\pi\}$. В результате уравнение (17) принимает вид

$$1 - r_1 e^{i(\tilde{\omega} - \omega_\alpha)T_{rf}} - q_1 e^{i(\tilde{\omega} - \beta\omega_\alpha)T_{rf}} = 0, \quad (20)$$

где параметр асимметрии

$$\beta = \arccos[(H_c - H_s)/H_0]/\pi. \quad (21)$$

Несложно увидеть, что для частот РЧ поля

$$\omega_{rf} = \frac{(1 - \beta)\omega_\alpha}{n} \quad (22)$$

дисперсионное уравнение (20) приобретает вид

$$1 - e^{i(\tilde{\omega} - \omega_\alpha)T_{rf}} = 0. \quad (23)$$

Последнее уравнение также определяет линии спектра с естественной шириной линии Γ_0 в положениях

ω_α , а при отходе частоты РЧ поля от резонансного значения (22) эти линии будут приобретать дополнительное уширение. Таким образом, релаксационно-стимулированный резонанс будет проявляться и в этом случае, но с увеличением напряженности постоянного поля H_s резонансная частота будет сдвигаться в сторону более низких радиочастот в соответствии с условием (22). В правом столбце на рис.3 приведены характерные спектры поглощения для частот РЧ поля в окрестности резонанса (22) для внешних и внутренних линий спектра на частотах $\omega_{rf} = (1 - \beta)\omega_1$ и $(1 - \beta)\omega_2$, соответственно. И как видно из этого рисунка, релаксационно-стимулированный резонанс проявляется и в этом случае в четкой форме. На рис.4 построена зависимость резонансной частоты от напряженности постоянного магнитного

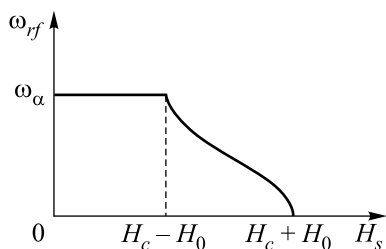


Рис.4. Зависимость частоты релаксационно-стимулированных резонансов от напряженности постоянного внешнего поля

поля для двух рассмотренных выше случаев стохастического перемангничивания.

В случае, когда параметры H_0 и H_s выбраны таким образом, что реализуются условия $H_s + H_0 > H_c$ и $H_0 - H_s > H_c$, и процесс перемангничивания частицы приобретает строго детерминированный характер ($r_1 = 0$ и $q_1 = 1$, $r_2 = 0$ и $q_2 = 0$), дисперсионное уравнение (20) переходит в уравнение вида

$$1 - e^{i(\tilde{\omega} - \beta\omega_\alpha)T_{rf}} = 0. \quad (24)$$

В этом предельном случае положения основных линий спектра определяются средним за период сверхтонким полем на ядре βH_{hf} , и в дополнение к ним появляются спутники, отстоящие от основных линий на расстоянии $\pm n\omega_{rf}$, в полном соответствии с результатами работы [8], в которой этот случай был исследован как теоретически, так и экспериментально. Естественно, что в этом случае никаких резонансных по РЧ полю явлений не наблюдается.

Таким образом, проведенный анализ показывает, что влияние постоянного магнитного поля на предсказанные ранее релаксационно-стимулированные резонансы носит нелинейный пороговый характер (рис.4) и не имеет даже близких аналогий среди других резонансных явлений. Отметим, что полученные результаты могут иметь и большое практическое значение. Настройку на резонанс можно проводить не только изменением частоты РЧ поля, но и наложением внешнего постоянного поля, что может в существенной степени упростить постановку соответствующих экспериментов.

1. L. Pfeiffer, J. Appl. Phys. **42**, 1725 (1971).
2. A. M. Afanas'ev, M. A. Chuev, and J. Hesse, Phys. Rev. **B56**, 5489 (1997).
3. А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, Ю. Гессе, ЖЭТФ **116**, 1001 (1999).
4. А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, and J. Hesse, J. Phys.: Cond.Matter **12**, 623 (2000).
5. J. Hesse, T. Graf, M. Korciewicz et al., Hyperfine Interact. **113**, 499 (1998).
6. I. F. Lyuksyutov, T. Nattermann, and V. Pokrovsky, Phys. Rev. **B59**, 4260 (1999).
7. E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, Phil. Trans. Royal Soc. London **A240**, 599 (1948).
8. А. Я. Дзюблик, В. Ю. Спивак, Р. А. Манапов, Ф. Г. Вагизов, Письма в ЖЭТФ **67**, 57 (1998).