

## НАБЛЮДЕНИЕ ФЛУКТУАЦИЙ МАГНИТНЫХ МОМЕНТОВ МИКРОЧАСТИЦ С ПОМОЩЬЮ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ МЕССБАУЭРОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

*М.В.Зеленухин, В.Е.Седов, Г.В.Смирнов,  
В.Н.Дубинин, О.Н.Разумов*

В спектре гамма-излучения, резонансно рассеянного на ядрах, входящих в состав магнитных микрочастиц  $\text{FeOОН}$ , обнаружена смещенная по частоте компонента, свидетельствующая о переходе ядер  $^{57}\text{Fe}$  в возбужденном состоянии на другой подуровень сверхтонкой структуры. Это наблюдение прямо указывает на наличие флуктуационных процессов в исследуемых микрочастицах.

Метод комбинационного (рамановского) рассеяния мессбауэровского излучения (КРМИ) состоит в селективном возбуждении ядерных переходов и частотном анализе испущенных при этом гамма-лучей<sup>1</sup>. Этот метод, впервые осуществленный в работе<sup>1</sup>, а затем более детально разработанный в<sup>2, 3</sup>, пока не получил широкого распространения. Между тем, именно такая схема эксперимента дает уникальную возможность непосредственно наблюдать релаксацию сверхтонких (СТ) магнитных полей, происходящую за время жизни ядра в возбужденном состоянии  $\tau_0$ . Поэтому использование метода КРМИ представляется очень актуальным для разрешения типичной проблемы мессбауэровской спектроскопии, связанной с невозможностью отличить релаксацию от неоднородного уширения линии по виду спектров СТ структуры. В качестве объекта исследования, а также для демонстрации возможностей метода КРМИ привлекают внимание магнитные микрочастицы и кластеры, у которых значительное уширение спектров СТ расщепления сочетается с большой вероятностью флуктуаций намагниченности<sup>4</sup>. В данной работе использовались микрокристаллы гетита  $\text{FeOОН}$ . В больших объемах это вещество является антиферромагнетиком с  $T_N = 393 \text{ K}$ , а в микрокристаллической форме (с размером кристаллитов  $\sim 1000 \text{ \AA}$ ) обладает аномально уширенными спектрами СТ структуры,

<sup>1</sup>) В физической литературе на английском языке до сих пор употреблялось название метода по ключевым словам Selective Excitation Double Mossbauer (SEDM).

сильно зависящими от температуры <sup>5</sup>. Исследуемый образец был изготовлен из обогащенных до 95% по изотопу <sup>57</sup>Fe частиц гетита, выращенных по методике, аналогичной <sup>5</sup>.

Для определения частотного спектра резонансно рассеянных гамма-лучей был изготовлен КРМИ спектрометр (рис. 1). В нем при помощи однолинейного мессбауэровского источника (150 мКи <sup>57</sup>Co : Cr), закрепленного на первом вибраторе, работающем в режиме постоянной скорости, производится избирательное возбуждение ядерного перехода между определенными подуровнями СТ структуры ядер <sup>57</sup>Fe, входящих в состав гетита.

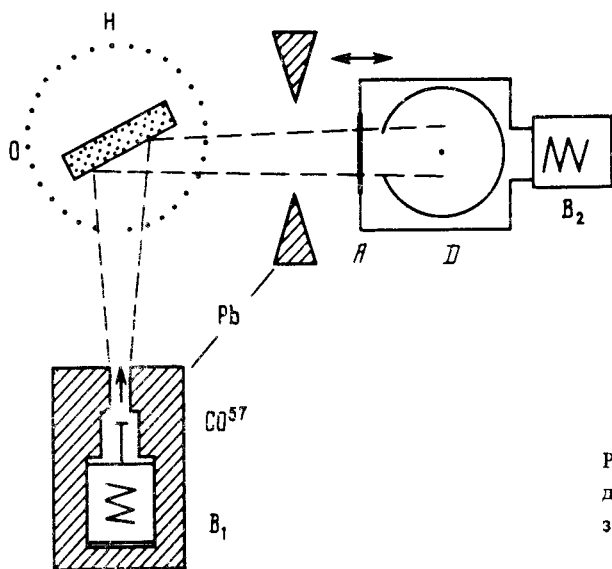


Рис. 1. Схема КРМИ спектрометра:  $O$  — исследуемый образец,  $H$  — нагреватель,  $A$  — анализатор,  $B_{1,2}$  — вибраторы,  $D$  — детектор

Резонансные гамма-кванты, испущенные в результате распада возбужденных таким образом ядер, анализируются по энергии мессбауэровским поглотителем (ферроцианид калия с эффективной толщиной  $\mu t = 18$ ), приводящимся в движение вторым вибратором, который работает в режиме постоянного ускорения. Прошедшее через поглотитель излучение регистрируется газовым пропорциональным счетчиком с ксеноновым наполнением. Исследуемый образец может помещаться в печь, сконструированную с учетом геометрии рассеяния.

При проведении эксперимента доплеровский сдвиг линии источника целесообразно подобрать таким образом, чтобы в резонансных ядрах рассеивателя селективно возбуждался переход  $-1/2 \rightarrow -3/2$ . Тогда, если в образце не происходят процессы, связанные с динамикой СТ полей, то он является пассивным отражателем первичного гамма-излучения (переход  $-3/2 \rightarrow 1/2$  запрещен правилами отбора), и рассеяние должно осуществляться чисто упругим образом. Если же СТ поля в образце участвуют во флуктуационных процессах, то рассеиватель уже должен вносить в спектры гамма-лучей определенные изменения. Эти изменения внешне проявляются как некоторая совокупность смещенных по частоте компонент СТ структуры, их вид зависит от конкретного механизма релаксации <sup>6, 7</sup>.

В нашем случае следует ожидать, что в результате разброса частиц по объемам исследуемая система обладает широким распределением времен релаксации. Поэтому наблюдаемый КРМИ спектр должен одновременно состоять из чисто упругой компоненты, соответствующей фракции частиц с медленной релаксацией  $\omega_{REL} \ll \tau_0^{-1}$  и неупругой части, отвечающей кристаллитам с частотами, превышающими  $\sim 10^6 \text{ с}^{-1}$ . Однако для частиц с очень быстрыми процессами релаксации (когда, как известно, СТ структура схлопывается) селективное возбуждение осуществляется по краю все более сужающейся одиноч-

ной линии поглощения, то есть вне резонанса. Поэтому вклады от частиц с быстрой релаксацией должны входить в КРМИ спектр с исчезающим весом, и чувствительность метода фактически оказывается ограниченной частотным окном  $\sim 10^6 - 10^9 \text{ с}^{-1}$ . Тогда по мере нагревания образца распределение частот релаксации будет смещаться относительно окна наблюдения, что должно привести к существенной трансформации наблюдаемых КРМИ спектров.

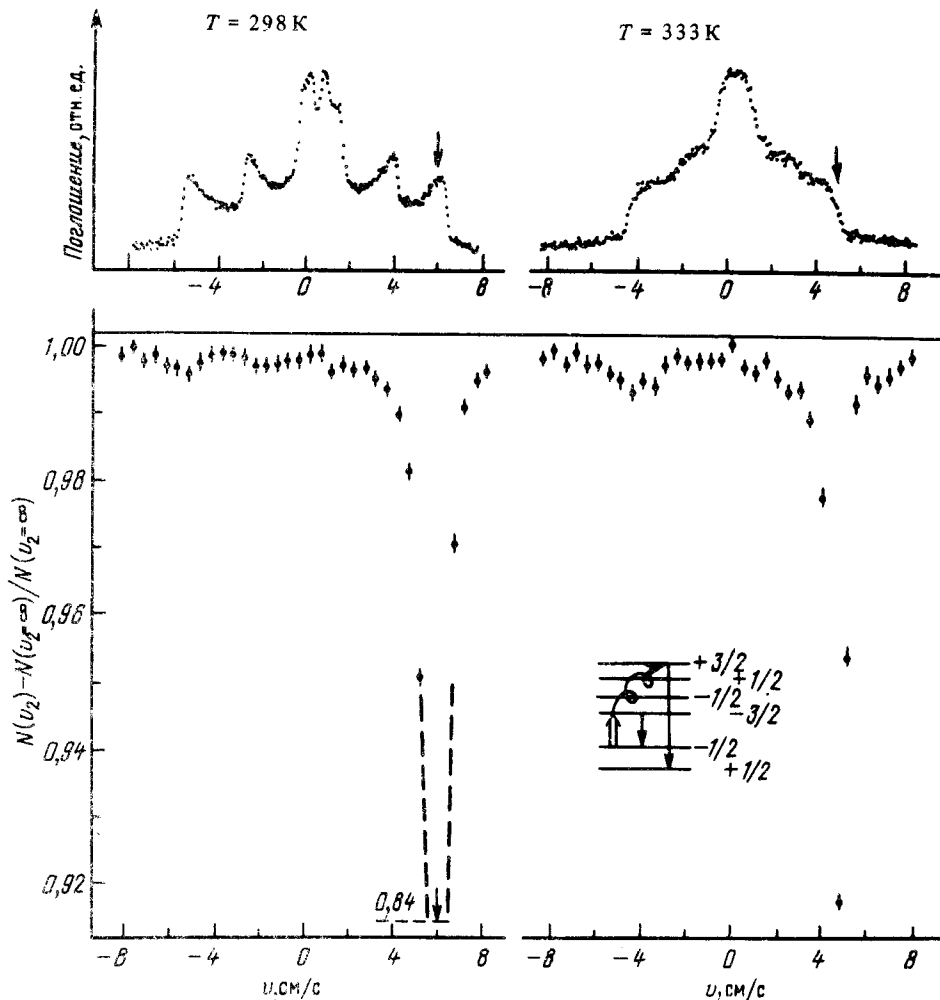


Рис. 2. Спектры поглощения (а) и КРМИ спектры (б) гетита при разных температурах. На врезке дана схема переходов между энергетическими подуровнями ядер  $^{57}\text{Fe}$  при наличии простейшего вида релаксации – скачкообразного опрокидывания магнитного момента и следующего за ним сверхтонкого поля на мессбауэровском ядре

На рис. 2 приведены КРМИ спектры исследованного образца гетита при  $T = 298 \text{ К}$  и  $T = 333 \text{ К}$ , а также даны соответствующие спектры поглощения. Селективное возбуждение производилось при энергиях, показанных на рисунке стрелками. Общей чертой спектров поглощения является сильное уширение линий СТ структуры, причем при  $333 \text{ К}$  спектр уже стремится к характерному релаксационному виду. Что касается КРМИ спектров, то в первом из них доминирует упругая компонента, в то время как следы релаксации едва заметны. Это означает, что в отношении динамики СТ полей при  $T = 298 \text{ К}$  в образце реализуется в основном статическая или квазистатическая – по сравнению с временем  $\tau_0$  – ситуация. Уширение, наблюдаемое в спектре поглощения следует, таким образом, связывать прежде всего с "мгновенным" неоднородным распределением СТ по-

лей. Доля микрочастиц с высокой скоростью релаксации в данном случае еще невелика, но с ростом температуры должна увеличиться. Действительно, при  $T = 333$  К в КРМИ спектре появляется отчетливое широкое распределение смещенных по частоте спектральных компонент. Это означает, что при данной температуре за время жизни  $\tau_0 = 140$  нс величина СТ полей на уже существенной доле резонансных ядер успевает сильно измениться, причем, судя по форме спектра, наиболее вероятны процессы переворота СТ поля. Отметим также падение упругой компоненты в 2,5 раза по сравнению со случаем  $T = 298$  К, что является очевидным следствием уменьшения доли "медленных" частиц с ростом температуры.

Таким образом, КРМИ эксперимент доказывает, что аномальный вид спектров поглощения микрочастиц гетита наряду со статическим разбросом СТ полей может в значительной степени объясняться релаксацией магнитных моментов. Этот вывод вступает в серьезные противоречия с существующей интерпретацией<sup>5</sup>, использующей механизм межчастичного взаимодействия. Уместно также отметить, что в отличие от предыдущего случая наблюдения сравнительно узких смещенных компонент СТ структуры, отвечающих чисто скачкообразному опрокидыванию СТ магнитного поля<sup>7</sup>, в нашем эксперименте неупругая часть КРМИ спектра имеет очень большую ширину. Вероятно, это объясняется тем, что в данной ситуации мессбауэровские ядра внедрены в магнитный микрокристалл, и СТ магнитное поле оказывается пропорциональным проекции коллективного магнитного момента подрешетки на ось квантования, то есть принимает непрерывный ряд значений<sup>8</sup>. Тем самым метод КРМИ позволяет не только зарегистрировать сам факт динамического поведения СТ полей, но и выявить истинный механизм релаксации магнитных моментов. Детальное исследование этого вопроса будет произведено в дальнейшем.

#### Литература

1. Артемьев А.Н., Смирнов Г.В., Степанов Е.П. ЖЭТФ, 1968, **54**, 1028.
2. Heiman N.D., Walker J.C., Pfeiffer L. Phys. Rev., 1969, **184**, 291.
3. Meisel W. Monatsb. Deutsch. Akad. Wiss. Berlin Vortr. Schrift, 1969, **11**, 355.
4. Мѳгип S. et al. In: Applications of Mössbauer spectroscopy, II. Ed. R.L.Cohen. N.Y.: Acad. Press., 1980, p.1.
5. Мѳгип S. et al. J. Mag. Mag. Mat., 1983, **40**, 163.
6. Афанасьев А.М., Горобченко В.Д. ЖЭТФ, 1974, **67**, 2246.
7. Balko V. Phys. Rev. B, 1986, **33**, 7421.
8. Афанасьев А.М., Седов В.Е. Изв. АН СССР, сер. физ. 1986, **50**, 2348.

Институт атомной энергии им. И.В.Курчатова

Институт металлофизики  
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию  
3 января 1989 г.