

СТАБИЛИЗАЦИЯ СВЕРХТОНКОЙ СТРУКТУРЫ ЛИНИИ МЁССБАУЭРА В ПАРАМАГНЕТИКАХ В МАЛОМ ВНЕШНЕМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

А.М.Афанасьев, Ю.М.Катак

Известно, что в парамагнетике в отсутствие магнитного поля, если время релаксации электронного спина мёссбауэровских атомов достаточно велико, должна возникать четкая магнитная сверхтонкая структура (СТС) мёссбауэровской линии [1, 2]. Однако, при определенных условиях такая структура может оказаться весьма чувствительной не только ко времени релаксации, но и к очень слабым статическим магнитным полям. Естественно, что в реальных условиях это должно приводить к замазыванию части или даже всей СТС за счет случайных магнитных полей, создаваемых ионами окружения [3]. Оказывается, и это будет показано ниже, можно получить вновь четкую СТС из такой неразрешенной структуры, если приложить к парамагнетику малое внешнее магнитное поле (подчеркнем, что речь идет о таких слабых полях, когда прямое взаимодействие поля с ядром пренебрежимо мало), т.е. налицо своеобразный эффект стабилизации СТС.

Для описания сверхтонкой структуры иона при наличии внешнего магнитного поля H и в отсутствие квадрупольного взаимодействия можно воспользоваться спиновым гамильтонианом в форме

$$\hat{\mathcal{H}} = A_{ik} I_1 S_k + g_{ik} \mu_0 S_1 H_k. \quad (1)$$

Здесь I — спин ядра, μ_0 — магнетон Бора. Для свободного иона S — полный момент электронной оболочки и A_{ik} и g_{ik} пропорциональны δ_{ik} (при этом g — обычный фактор Ланде). В случае кристалла, когда энергия штарковского расщепления основного термина иона в кристаллическом поле велика по сравнению с энергией сверхтонкого взаимодействия, для каждого штарковского уровня в отдельности мы имеем гамильтониан в форме (1), где S — эффективный спин, величина которого определяется кратностью вырождения соответствующего уровня (см., например, [4]).

Рассмотрим сначала для простоты случай, когда $A_{ik} = A\delta_{ik}$ и $g_{ik} = g\delta_{ik}$. И пусть

$$H \ll A/g\mu_0. \quad (2)$$

При этом энергетические уровни будут определяться величиной полного момента $F = I + S$ и проекцией этого момента M_F на направление

$H(I+S \geq F \geq |I-S|)$:

$$E_i(F^i, M_F^i) = \frac{F^i(F^i+1) - S(S+1) - I^i(I^i+1)}{2} A^i + L_F^i g \mu_0 M_F^i H, \quad (3)$$

$$L_F^i = \frac{F^i(F^i+1) + S(S+1) - I^i(I^i+1)}{2F^i(F^i+1)}.$$

Здесь $i = 0, 1$ — в зависимости от того, рассматривается основное или возбужденное состояние ядра.

Из (3) непосредственно следует, что теперь имеется большое число линий перехода $E_1 - E_0$ для данной мультипольности излучения и что очень слабые поля $H \gtrsim \Gamma_0 / g \mu_0$ (Γ_0 — естественная ширина мессбауэровской линии) вызывают расщепления и сдвиги линий, заметно меняя спектр. Отсюда и возникает сильное замытие спектра, когда на него действуют случайным образом разбросанные по величине слабые поля. (Для ядер Fe^{57} спектр размывается при полях порядка нескольких эрстед).

Физически такая чувствительность спектра к малым H объясняется тем, что уровни, между которыми происходит переход, являются смешанными электронно-ядерными, и магнитное поле сдвигает эти уровни на величину порядка взаимодействия этого поля с магнитным моментом электронной оболочки, а не с магнитным моментом ядра (см. (3)).

Если же теперь

$$H \gg A / g \mu_0, \quad (4)$$

то разрывается связь между I и S (своеобразный эффект Пашен — Бака), и уровни энергии будут определяться значениями проекций спина I_z и S_z на направление магнитного поля:

$$E^i(I_z^i, S_z^i) = A^i I_z^i S_z^i + g \mu_0 S_z^i H. \quad (5)$$

Так как при ядерном переходе проекция S_z сохраняется, то легко видеть, что теперь положение линий СТС вообще не зависит от H , т.е. структура оказывается нечувствительной к внутренним полям и следовательно, устойчива.

При переходе к реальному кристаллу, хотя вся качественная картина сохраняется, анизотропия тензоров A_{ik} и g_{ik} привносит целый ряд принципиальных особенностей. Пусть тензоры A_{ik} и g_{ik} приводятся к диагональному виду в одной и той же системе координат. При этом весьма реальной оказывается ситуация, при которой $g_x = g_y = 0$,

$g_z \neq 0$ и $A_x = A_y = 0, A_z \neq 0$. Легко видеть, что при этом уровне энергии имеют форму (5), и СТС мёссбауровской линии оказывается устойчивой и независимой от магнитного поля. При произвольном соотношении между компонентами тензоров условие (2) приводит к системе смешанных электронно-ядерных уровней, т.е. к СТС, замазываемой слабыми магнитными полями в кристалле, а условие (4) — к стабильной СТС. При этом однако величина стабилизирующего поля может резко меняться в зависимости от его направления в монокристалле. Если учесть, что в случае так называемого слабого кристаллического поля g_x и A_x пропорциональны друг другу, то, например, при аксиальной симметрии соответствующее отношение H_z / H_x будет, грубо говоря, пропорционально $(A_x / A_z)^2$. Отметим также, что при

$$A_x = A_y \gg A_z, \quad A_z \gg A_x, A_y \quad (6)$$

можно получить четкую сверхтонкую структуру и в поликристаллическом образце, несмотря на чувствительность СТС к направлению стабилизирующего поля.

Все эти утверждения мы проиллюстрируем на характерном примере иона Fe^{3+} , находящегося в аксиально симметричном кристаллическом поле.

Основной терм иона ${}^6S_{5/2}$ расщепляется в этом случае на три Крамеровских дублета:

$$\begin{aligned} S_z = \pm 5/2 & \quad (A_x = A_y = 0, \quad A_z = 5A), \\ S_z = \pm 3/2 & \quad (A_x = A_y = 0, \quad A_z = 3A), \\ S_z = \pm 1/2 & \quad (A_x = A_y = 3A, \quad A_z = A). \end{aligned} \quad (7)$$

Как следует из вышесказанного, дублеты $S_z = \pm 5/2; \pm 3/2$ должны давать четкие спектры СТС. Спектр от дублета $S_z = \pm 1/2$ в отсутствии внешнего поля должен быть сильно размазанным. Именно такая картина и наблюдалась на эксперименте [2]. При наложении внешнего поля спектры СТС от дублетов $S_z = \pm 5/2; \pm 3/2$ не меняются, а в спектре от дублета $S_z = \pm 1/2$ должны появиться четкие линии. При этом как показывают расчеты, для получения стабильной картины спектра от дублета $S_z = \pm 1/2$ достаточно приложить поле $H_x \sim 100$ э. Если же направить поле по оси OZ , то требуются поля приблизительно на порядок большие. На рис. 1 приведены спектры от дублета $S_z = \pm 1/2$ в поле $H = H_0 + H'$, где $H_0 = 100$ и 150 э, а H' — хаотическое по направлению поле, причем $H' = 10$ э, для случаев а) $H_0 \perp OZ$,

б) $H_0 \parallel OZ$. Как видно из этого рисунка, в случае а) спектр имеет четкую шестерку линий, слабо меняющуюся при переходе от 100 к 150 э. В случае б) спектр оказывается сильно замазанным для обоих значений H_0 .

Интересно, что в соответствии с высказанными ранее соображениями поле $H \sim 100$ э оказывается стабилизирующим и в случае поликристалла. Соответствующий спектр приведен на рис. 2 ($H_0 = 200$ э, $H' = 0$). На этом же рисунке пунктиром приведен спектр от дублета $S_z = \pm 3/2$.

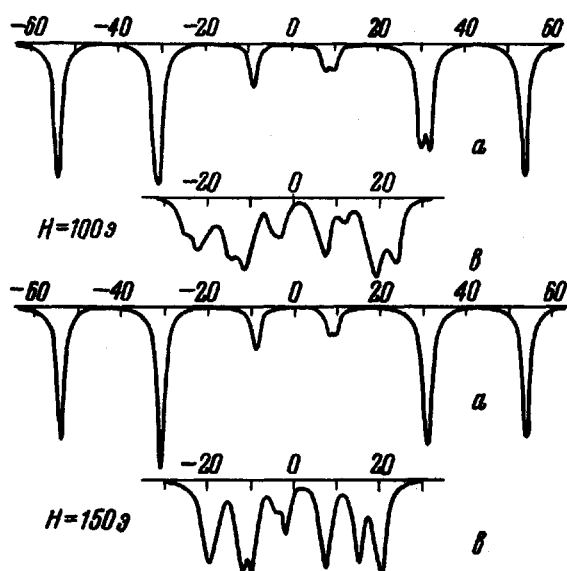


Рис. 1

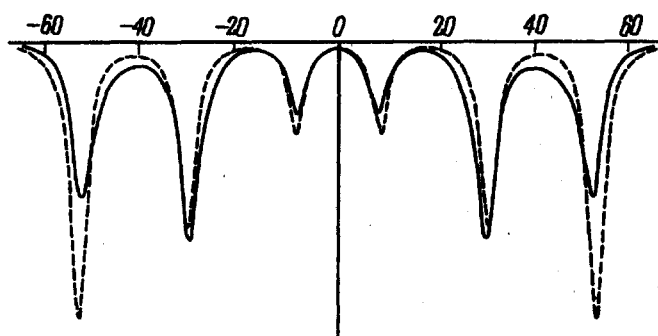


Рис. 2

В силу (7) положение линий этого дублета совпадает с положением линий от дублета $S_z = \pm 1/2$ при стабилизирующем поле $\perp OZ$. Положение линий в поликристалле очень близко к этому случаю.

Горобченко и др. [5] был поставлен опыт по обнаружению эффекта стабилизации. Накладывая на поликристаллический образец корунда с примесью трехвалентного иона железа с мёссбауэровским ядром Fe^{57} внешнее магнитное поле (60 и 120 э) авторы обнаружили в спектре СТС новые четкие линии, которые в нулевом внешнем поле отсутствовали. Положение этих линий соответствует положению линий спектра на рис.2.

Наличие эффекта стабилизации сильно расширяет класс веществ, в которых можно исследовать СТС линии Мёссбауэра. Сюда относятся вещества с произвольным соотношением компонент тензора A , для большинства штарковских уровней. Это касается прежде всего вещества как с очень низкой симметрией кристаллического поля, окружающего мёссбауэровский ион, так и с очень высокой (например, кубической). Четкая СТС в этих веществах может наблюдаться только при наложении стабилизирующего магнитного поля.

Наложение внешнего поля делает, как правило, все линии СТС более резкими, что в существенной степени облегчает изучение процессов спин-решеточной и спин-спиновой релаксации.

И, наконец, стабилизированная СТС оказывается очень чувствительной к небольшим изменениям в окружающем ион кристаллическом поле, и следовательно, можно получить о последнем весьма подробную информацию. Это относится прежде всего к экспериментам с монокристаллическими образцами.

Авторы благодарны В.Д.Горобченко за помощь в проведении численных расчетов, необходимых для построения рисунков.

Поступило в редакцию
7 октября 1968 г.

Литература

- [1] А.М.Афанасьев, Ю.М.Каган. ЖЭТФ, 45, 1660, 1963.
- [2] G. K. Wertheim, M. P. Remeika. Phys. Lett., 10, 14, 1964.
- [3] H. H. Wickman, M. P. Klein, D. A. Shirley. Phys. Rev., 152, 345, 1965.
- [4] В. Лоу. Парамагнитный резонанс. М., ИИЛ, 1962.
- [5] В.Д.Горобченко, И.И.Лукашевич, В.В.Скляревский, К.Ф.Цицкишвили, Н.И.Филиппов, Письма ЖЭТФ, 8, 625, 1968.