

Письма в ЖЭТФ, том 18, вып. 10, стр. 641 – 646

20 ноября 1973 г.

## ИССЛЕДОВАНИЕ АНИЗОТРОПИИ СВЕРХТОНКОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В МОНОКРИСТАЛЛЕ $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O} : \text{Fe}^{3+}$

*С. С. Якимов, В. Н. Зарубин*

Сообщаются результаты исследования эффекта Мессбауэра на примесных ядрах  $\text{Fe}^{57}$  в монокристалле  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ . Впервые обнаружена резкая ориентационная зависимость величины расщепления СТС в слабом внешнем магнитном поле  $H = 300$  э.

Сверхтонкая структура (СТС) мессбауэровской линии в парамагнетиках, имеющая в общем случае более сложный вид, чем в магнитоупорядоченных веществах, оказывается чрезвычайно чувствительной к слабым внешним магнитным полям [1 – 4]. Эта чувствительность обусловлена тем обстоятельством, что в слабых полях состояния ядра

парамагнитного иона являются смешанными электронно-ядерными вследствие чего при ядерных переходах изменяется состояние электронной оболочки иона. В том случае, когда взаимодействие электронного спина  $S$  с магнитным полем  $H$  сравнимо со сверхтонким взаимодействием, оно может проявиться непосредственно в спектре СТС.

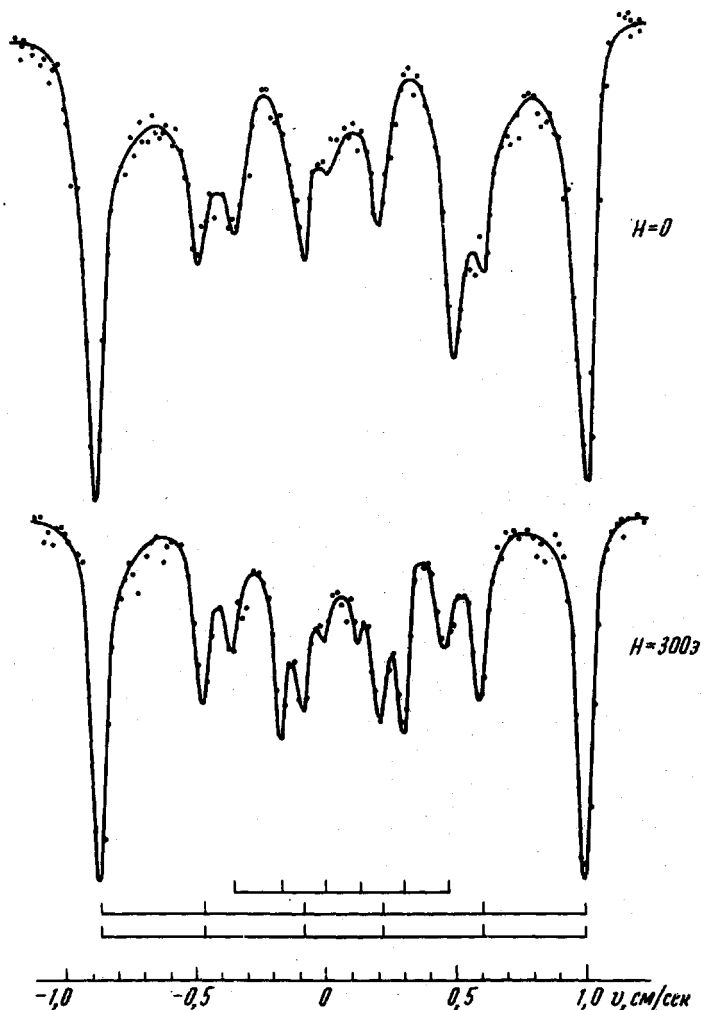


Рис. 1. Мессбауэровские спектры поглощения ядер  $Fe^{57}$  в монокристалле  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O : Fe^{3+}$  в нулевом внешнем магнитном поле и в стабилизирующем поле  $H = 300 \text{ э}$  ( $H \perp k, \gamma$ ) при температуре  $77^\circ K$ . Источник  $Co^{57}$  в  $Cr$

Влияние поля  $H$  известно, прежде всего, как "эффект стабилизации" [1], который заключается в восстановлении четкой СТС мессбауэровского спектра, размываемой хаотическими полями магнитных ионов в кристалле и внешними полями рассеяния. В исследованиях, проведенных на примесных ядрах  $Fe^{57}$  в поликристаллических образцах, эффект стабилизации был обнаружен экспериментально [2, 3], причем, в этих же работах была продемонстрирована возможность получения информации о кристаллическом поле в месте расположения мессбауэровского иона.

До сих пор, однако, не было проведено ни одного эксперимента с такой постановкой задачи в парамагнитных монокристаллах, тогда как в них должна наблюдаться зависимость СТС не только от величины, но и от направления  $H$  относительно кристаллографических осей образца. Изучение этой зависимости с целью получения детальной информации о структуре кристаллического поля, а также более полного изучения релаксационных явлений в парамагнетиках представляет, по нашему мнению, значительный интерес.

В настоящей работе сообщаются результаты исследования СТС мессбауэровской линии примесных ядер  $Fe^{57}$  в монокристалле  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ , с моноклинной решеткой, параметры которой  $a = 10,86 \text{ \AA}$ ;  $b = 9,59 \text{ \AA}$ ;  $c = 13,83 \text{ \AA}$ ;  $\alpha = \gamma = 90^\circ$ ;  $\beta = 96^\circ 10'$  (пространственная группа  $P_2 1/a$  [5]). Использованные в качестве поглотителей образцы приготавливались путем медленного выпаривания водного раствора  $Al(NO_3)_3$ , содержащего 0,5 мол%  $Fe^{57}(NO_3)_3$ . Типичные размеры выращенных таким способом монокристаллов составляли  $\sim 15 \times 15 \times 5 \text{ мм}^3$ .

В опытах по исследованию температурной зависимости мессбауэровских спектров было установлено, что время спин-решеточной релаксации ионов  $Fe^{3+}$  при  $T \leq 77^\circ K$  достаточно велико (см. также [6]), причем, ширины линий отдельных компонент спектра остаются практически неизменными в интервале температур 4,2 –  $77^\circ K$ . Это обстоятельство делает соединение  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  весьма удобным объектом исследования эффекта Мессбауэра на примесных ядрах  $Fe^{57}$ .

На рис. 1 приведены мессбауэровские спектры поглощения, полученные в отсутствие внешнего магнитного поля и в поле  $H = 300 \text{ э}$ , перпендикулярном направлению регистрируемых  $\gamma$ -квантов ( $H \perp k_\gamma$ ). Видно, что при наложении поля спектр становится симметричным и в центральной его части появляются новые компоненты, соответствующие, как показывает обработка спектров на ЭВМ, одной из трех, равных по площади СТС от отдельных крамерсовских дублетов  $D_\nu^{(i)}$  ( $i = 1, 2, 3$ ;  $\nu = 1, 2$ ) основного терма  ${}^6S_{5/2}$  иона  $Fe^{3+}$ , расщепленного кристаллическим полем. То обстоятельство, что влиянию  $H$  подвержен только один спектр СТС, а два других "стабильных" спектра совпадают, позволяет, в соответствии с результатами работы [7], восстановить спиновый гамильтониан  $\mathcal{H}^{(i)}$  для каждого изолированного крамерсовского дублета  $D_\nu^{(i)}$ :

$$\mathcal{H}^{(i)} = A_{xx}^{(i)} I_x S_x + A_{yy}^{(i)} I_y S_y + A_{zz}^{(i)} I_z S_z + \\ + \mu_B (g_{xx}^{(i)} H_x S_x + g_{yy}^{(i)} H_y S_y + g_{zz}^{(i)} H_z S_z),$$

где  $S$  — электронный спин,  $I$  — спин ядра,  $H$  — магнитное поле,  $\mu_B$  — магнетон Бора,  $A_{ik}^{(i)}$  — тензор сверхтонкого взаимодействия,  $g_{ik}^{(i)} = 2A_{ik}^{(i)} / A$  — фактор Ланде,  $A$  — константа сверхтонкого взаимодействия для изолированного иона. Параметры тензора  $A_{ik}^{(i)}$  для трех дуб-

летов такого гамильтониана в рассматриваемом случае соответственно равны:

$$A_{xx}^{(1)} = 4,8392 \text{ A}; \quad A_{yy}^{(1)} = 0,3036 \text{ A}; \quad A_{zz}^{(1)} = 0,4286 \text{ A}; \quad A_{xx}^{(2)} = A_{yy}^{(1)}$$

$$A_{yy}^{(2)} = A_{xx}^{(1)}; \quad A_{zz}^{(2)} = A_{zz}^{(1)}; \quad A_{xx}^{(3)} = A_{yy}^{(3)} = A_{zz}^{(3)} = 2,1492 \text{ A},$$

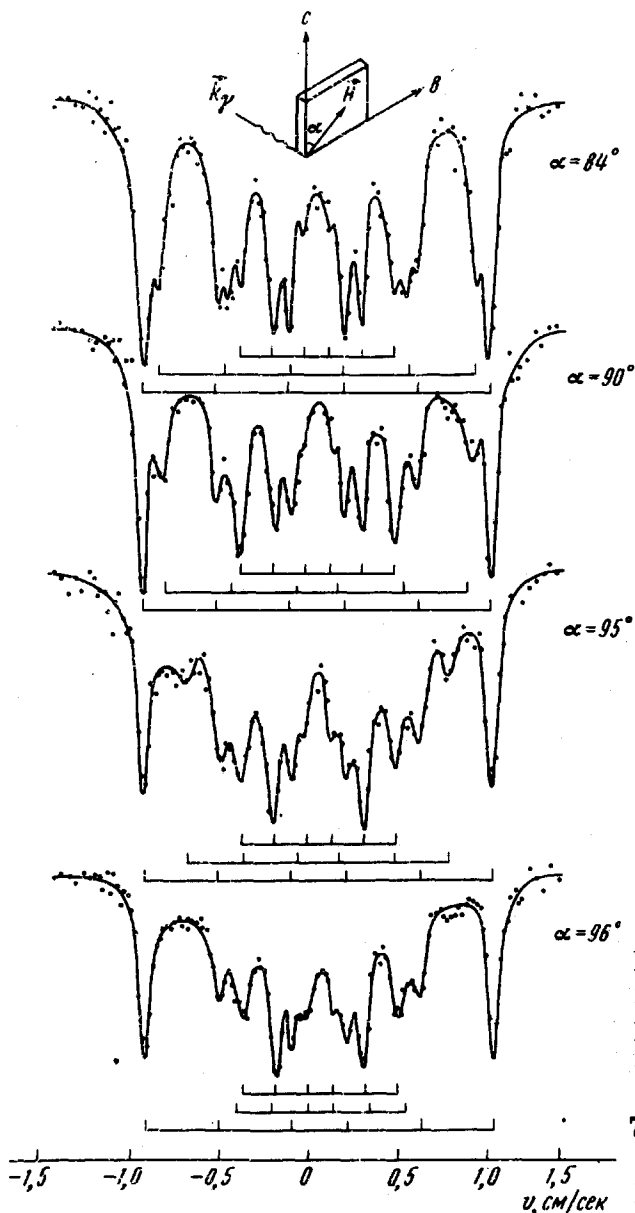


Рис. 2. Спектры поглощения в  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O} : \text{Fe}^{3+}$  для различной ориентации образца в магнитном поле  $H = 300 \text{ э}$  ( $H \parallel k$ ) при температуре  $T = 77^\circ \text{K}$ . Вверху приведено схематическое изображение геометрии опыта

Сверхтонкое взаимодействие для дублета  $D_V^{(3)}$  полностью изотропно и соответствующая ему СТС размывается слабыми хаотическими магнитными полями  $H \sim 1 \text{ э}$  ( $H \ll A/g\mu_B$  [1]). Два других дублета —  $D_V^{(1)}$  и  $D_V^{(2)}$ , как это видно из структуры тензора  $A_{jk}^{(1,2)}$  будут чувствительны к  $H$  только при определенной ориентации последнего относи-

тельно образца. При условии, что поле  $\mathbf{H}$ , приложенное к образцу, вызывает расщепление кramerсовского дублета много большее его сверхтонкого расщепления, имеет место следующее выражение для величины эффективного поля  $H_n$ , действующего на ядро (см., например, [4]):

$$H_n = H_0 \left[ \frac{(A_{xx}^4 \cos^2 \phi + A_{yy}^4 \sin^2 \phi) \sin^2 \theta + A_{zz}^4 \cos^2 \theta}{(A_{xx}^2 \cos^2 \phi + A_{yy}^2 \sin^2 \phi) \sin^2 \theta + A_{zz}^2 \cos^2 \theta} \right]^{1/2},$$

где углы  $\theta$  и  $\phi$  определяют направление стабилизирующего поля  $\mathbf{H}$  относительно связанной с образцом системы координат, в которой диагональны тензоры  $A_{ijk}^{(i)}$  и  $g_{ijk}^{(i)}$ .

Легко видеть, что для анизотропного тензора  $A_{ijk}^{(1,2)}$  ( $A_{xx}^{(1)} \gg A_{yy}^{(1)} \approx A_{zz}^{(1)}$ ,  $A_{yy}^{(2)} \gg A_{xx}^{(2)} \approx A_{zz}^{(2)}$ ) вблизи значений углов  $\phi = 0$  (плоскость  $XZ$ ),  $\phi = \pi/2$  (плоскость  $YZ$ ) и  $\theta = 0^\circ$  (ось  $OZ$ ) должно происходить резкое уменьшение величины  $H_n$ . Поскольку положение этих плоскостей и, тем более оси  $OZ$  заранее не известно, поиск их представляет довольно трудоемкую экспериментальную задачу.

Результаты ориентационной зависимости спектров СТС представлены на рис. 2. Значение угла  $\alpha = 84^\circ$  соответствует такому направлению  $\mathbf{H}$  относительно кристаллографических осей образца, вблизи которого начинается заметное изменение СТС одного из дублетов. При изменении угла  $\alpha$  компоненты одного из совпадающих друг с другом спектров СТС перемещаются к центру тяжести результирующего мессбауэровского спектра. Видно, что при  $\alpha = 96^\circ$  изменение направления  $\mathbf{H}$  всего на один градус приводит к очень резкому изменению величины расщепления спектра СТС. Это соответствует тому условию, что поле  $\mathbf{H}$  находится вблизи плоскостей  $XZ$  и  $YZ$ . Как уже отмечалось выше, аналогичная ситуация должна проявляться и для второго спектра СТС при соответствующем выборе направления  $\mathbf{H}$ . Если  $\mathbf{H}$  приближается к оси  $OZ$ , расщепление обоих спектров СТС должно уменьшаться одновременно.

В настоящее время нами проводятся детальные исследования анизотропии сверхтонкого взаимодействия в  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O} : \text{Fe}^{3+}$  с целью определения предела чувствительности СТС к направлению поля  $\mathbf{H}$ .

Благодарим И.К.Кикоина за постоянное внимание к работе и А.М.Афанасьева за постановку задачи и весьма полезные обсуждения.

Поступила в редакцию  
16 октября 1973 г.

### Литература

- [1] А.М.Афанасьев, Ю.М.Каган. Письма в ЖЭТФ, 8, 620, 1968.
- [2] В.Д.Горобченко, И.И.Лукашевич, В.В.Скляревский, К.Ф.Цицкишвили, Н.И.Филиппов. Письма в ЖЭТФ, 8, 625, 1968.
- [3] W.Oosterhuis, S.De Benedetti, G.Lang. Phys. Lett., 26A, 214, 1968.
- [4] А.М.Афанасьев, В.Д.Горобченко, И.Дежи, И.И.Лукашевич, Н.И.Филиппов. ЖЭТФ, 62, 673, 1972.

[5] P. Herpin, K. Sudarsanan. Bull. Soc. franc. Miner. Crist., 88, 595, 1965.

[6] А.А.Маненков, В.А.Миляев. ЖЭТФ, 58, 796, 1970.

[7] А.М.Афанасьев, В.Д.Горобченко. ЖЭТФ, 60, 283, 1971.

---