1969 г. Апрель Том 97, вып. 4

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

## ИЗ ТЕКУЩЕЙ ЛИТЕРАТУРЫ

548.0:53

# О ПРЯМОМ ОПРЕДЕЛЕНИИ МАГНИТНОЙ СТРУКТУРЫ КРИСТАЛЛОВ С ПОМОЩЬЮ ЭФФЕКТА МЁССБАУЭРА

Открытие эффекта Мёссбауэра дало в руки физиков чрезвычайно мощный и поразительно универсальный метод исследования. Диапазон применения этого метода простирается от исследований фундаментальных физических закономерностей (проверка общей теории относительности, исследование фундаментальных законов симметрии в физике) до решения сугубо практических и инженерных задач (быстрое определение процентного содержания химического элемента в руде, контроль скорости сближения искусственных объектов в космическом пространстве). Несмотря на широкое применение этого эффекта в физических исследованиях, в настоящее время его возможности, по-видимому, используются далеко не полностью. Иллюстрацией этого утверждения может служить настоящая заметка. В ней сообщается о возможности прямого исследования магнитных кристаллических структур с помощью эффекта Мёссбауэра, на которую было обращено внимание в теоретической работе [1]. Предлагаемый в [1] метод является аналогом магнитной нейтронографии, а в его основе лежит зависимость амплитуды мёссбауэровского рассеяния $\gamma$-квантов от направления магнитного поля на рассеивающем ядре.

Прежде чем изложить подробнее сущность обсуждаемого метода, напомним читателю некоторые сведения об эффекте Мёссбауэра. Эффект Мёссбауэра — это явление, с помощью которого удается получить и детектировать ядерное $\gamma$-излучение с шириной линии, близкой к естественной ширине $\gamma$-линий. Это означает, что соответствующее $\gamma$-излучение, энергия которого $E_\gamma$ обычно порядка десятков *кэв*, имеет ширину линии $\Gamma \sim 10^{-6}$—$10^{-10}$ *эв*. Именно сочетание этих двух свойств мёссбауэровского излучения, узости линии и высокой энергии, т. е. малости длины волны излучения, объясняет столь широкое его использование в физических исследованиях. Эти же качества мёссбауэровского излучения определяют возможность прямого исследования с его помощью магнитных структур кристаллов. Узость линии позволяет разрешить зеемановское расщепление ядерных уровней в кристаллических полях, т. е. определяет чувствительность метода по отношению к магнитным полям, а малая длина волны $\lambda \lesssim 10^{-8}$ *см* позволяет наблюдать дифракцию мёссбауэровского излучения на кристаллах, т. е. проводить прямое исследование их структуры. Для подтверждения сказанного приведем параметры наиболее широко известного мёссбауэровского $\gamma$-перехода в $^{57}$Fe:

$$E_\gamma = 14{,}4 \text{ кэв}, \quad \Gamma \approx 10^{-8} \text{ эв}, \quad \frac{\Gamma}{E_\gamma} \approx 10^{-12},$$

время жизни возбужденного состояния $\tau_\gamma = 10^{-7}$ *сек*.

Детектирование мёссбауэровского излучения производится обычно с помощью резонансного поглощения. Ввиду узости линии допплеровского сдвига энергии $\gamma$-излучения за счет движения источника или поглотителя $\gamma$-излучения со скоростями порядка 0,1—1 *см/сек* оказывается достаточно для того, чтобы нарушить условия резонансного поглощения. На рис. 1, *а* показан типичный мёссбауэровский спектр поглощения. На нем представлена интенсивность прошедшего через поглотитель $\gamma$-излучения $I$ в зависимости от скорости источника излучения $v$ относительно поглотителя. Приведенный график относится к случаю, когда на мёссбауэровских ядрах в поглотителе существует магнитное поле, достаточно сильное для зеемановского расщепления ядерных уровней, а линия источника не расщеплена. Условия резонансного поглощения на отдельных зеемановских переходах выполняются при определенных «резонансных» значениях скорости $v$. Именно этим значениям скоростей и соответствуют на графике минимумы пропущенной поглотителем интенсивности. Кроме резонансного

поглощения, наблюдается резонансное рассеяние мёссбауэровского излучения, а также его дифракция на кристаллических структурах [2,3]. График зависимости интенсивности рассеянного излучения от $v$ для того же источника и рассеивателя (поглотителя), с помощью которых был получен рис. 1, *а*, выглядит, как показано на рис. 1, *б*. Теперь «резонансным» значениям скорости $v$ соответствуют максимумы в рассеянии. Обычно для исследования магнитного упорядочения в кристаллах с помощью эффекта Мёссбауэра используют зависимость характера мёссбауэровских спектров для монокристаллического поглотителя (рассеивателя), находящегося во внешнем магнитном поле, от направления этого поля. Если напряженность внешнего магнитного поля сравнима с напряженностью кристаллических полей, то, изменяя его направление, можно по изменению ядерного зеемановского расщепления, проявляющегося в изменении расстояния между минимумами (максимумами) на рис. 1, *а*, *б*, судить об ориентации кристаллических магнитных полей относительно внешнего поля, т. е. делать заключение о магнитной структуре кристаллов.

В работе [1] предлагается прямой метод определения магнитной структуры кристаллов, основанный на анализе картины дифракции при резонансном рассеянии мёссбауэровского излучения на монокристаллах. Оказывается, что при наличии магнитного упорядочения в кристалле в мёссбауэровском рассеянии существуют «магнитные» брэгговские максимумы. Если элементарная ячейка магнитной структуры отлична от кристаллической элементарной ячейки, то существуют чисто «магнитные» максимумы, возникновение которых связано только с зависимостью амплитуды мёссбауэровского рассеяния от направления магнитного поля на рассеивающем ядре, а положение не совпадает с положением кристаллических максимумов. Напомним, что рассеяние рентгеновских лучей, амплитуда которого не зависит от магнитного упорядочения, не может дать информации о магнитном порядке. Поляризация мёссбауэровского излучения в брэгговских максимумах содержит информацию об ориентации магнитных полей на мёссбауэровских ядрах относительно кристаллографических направлений. Подчеркнем, что с помощью дифракции мёссбауэровского излучения прямым образом может быть определена структура, образуемая магнитными кристаллическими полями на мёссбауэровских ядрах, а не магнитная структура кристалла в общепринятом смысле слова. Однако прямое определение упорядочения магнитных полей на ядрах во многом эквивалентно прямому определению магнитной структуры кристалла, т. е. упорядочения магнитных моментов атомов, поскольку как раз последнее и вызывает упорядочение магнитных полей на ядрах.

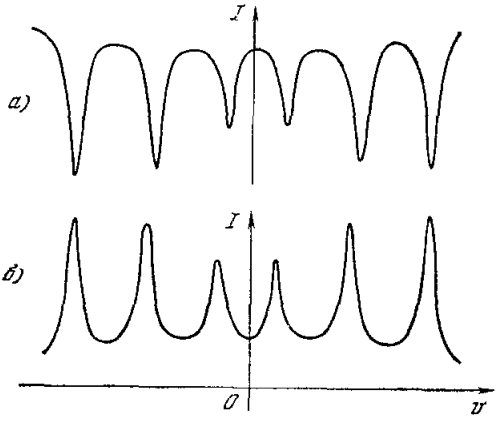

Рис. 1.

Поясним причину зависимости амплитуды мёссбауэровского рассеяния от направления магнитного поля на рассеивающем ядре. В силу большого времени жизни мёссбауэровских уровней процесс резонансного рассеяния может быть разделен на два этапа: 1) резонансное поглощение $\gamma$-кванта, переводящее ядро в промежуточное возбужденное состояние; 2) испускание возбужденным ядром $\gamma$-кванта, возвращающее ядро в основное состояние. Если ядро находится в магнитном поле, вызывающем зеемановское расщепление ядерных уровней, а мёссбауэровское рассеяние анализируется при скорости источника $v$, соответствующей определенному зеемановскому переходу между мультиплетами основного и возбужденного состояний ядра (определенному максимуму на рис. 1, *б*), то это означает, что промежуточное состояние рассеяния характеризуется вполне определенным значением проекции спина ядра на направление магнитного поля. Таким образом, спин ядра в промежуточном состоянии оказывается определенным образом ориентированным относительно направления магнитного поля. Чтобы теперь убедиться в зависимости амплитуды рассеяния от направления магнитного поля, достаточно рассмотреть второй этап рассеяния и вспомнить, что вероятность испускания поляризованным ядром $\gamma$-кванта в некотором направлении зависит от угла между этим направлением и осью поляризации. На рис. 2 приведена зависимость интенсивности излучения $I$ от $\theta$, угла между направлением излучения и магнитным полем, для дипольного перехода с изменением проекции ядерного спина на направление поля $\Delta M = 0$.

Перейдем теперь к простейшей модели резонансного рассеяния, количественно описывающей изложенные качественные соображения. Пусть монохроматический

пучок $\gamma$-квантов упруго резонансно рассеивается на монокристалле, содержащем мессбауэровский изотоп, и пусть магнитное упорядочение в кристалле создает магнитные поля на ядрах, достаточные для расщепления мёссбауэровского излучения на отдельные зеемановские компоненты. Будем считать кристалл идеальным, содержание мёссбауэровского изотопа равным 100%, а ядра — имеющими нулевой спин в основном состоянии и жестко закрепленными в узлах кристалла. Сделанные допущения означают, что упругое рассеяние полностью когерентно и что мёссбауэровский фактор $f = 1$. Полагая также кристалл достаточно тонким, будем пренебрегать экстинкцией. В случае полностью поляризованного пучка первичных $\gamma$-квантов, поляризация которого задается вектором поляризации $\mathbf{n}$, сечение упругого резонансного рассеяния, отвечающее конечной поляризации, описываемой вектором поляризации $\mathbf{n}'$, имеет вид

$$\frac{d\sigma(\mathbf{k}, \mathbf{n}; \mathbf{k}', \mathbf{n}')}{d\Omega_{\mathbf{k}'}} = A \left| \sum_m f_m(\mathbf{k}, \mathbf{n}; \mathbf{H}_m; \mathbf{k}', \mathbf{n}') e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\mathbf{r}_m} \right|^2 \sum_{\tau} \delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}'-\tau), \qquad (1)$$

где $\mathbf{k}$, $\mathbf{k}'$ — волновые векторы исходного и рассеянного $\gamma$-квантов соответственно, $\mathbf{H}_m$ — магнитное поле на ядре, находящемся в $m$-м узле решетки, $f_m$ — амплитуда мёссбауэровского рассеяния $\gamma$-кванта для $m$-го узла, $A$ — несущественный для дальнейшего множитель, $\tau = 2\pi\mathbf{b}$, $\mathbf{b}$ — вектор обратной решетки кристалла. В выражении (1) $m$ обозначает индекс суммирования по узлам, содержащим ядра мёссбауэровского изотопа, в пределах одной элементарной ячейки кристалла, $\mathbf{r}_m$ — вектор, определяющий положение $m$-го узла.

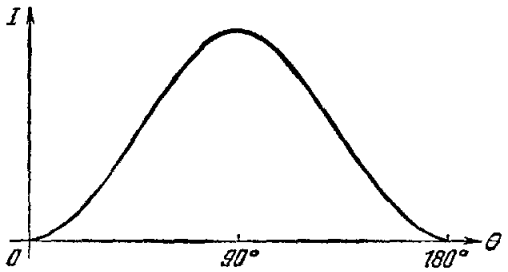

Рис. 2.

Остановимся для простоты на случае, когда магнитные поля на мёссбауэровских ядрах могут отличаться только направлением, т. е. $|\mathbf{H}_m|$ не зависит от $m$. В этом случае резонансные скорости источника относительно рассеивателя одинаковы для всех $m$. Если бы амплитуда $f_m$ не зависела от направления магнитного поля, как это имеет место для рассеяния рентгеновских лучей, то независимо от того, существует или нет упорядочение магнитных полей на ядрах, дифракционная картина, описываемая выражением (1), определялась бы элементарной ячейкой кристаллической структуры. При наличии упорядочения магнитных полей на ядрах, вследствие зависимости от направления магнитного поля, формула (1) дает дополнительные интерференционные максимумы, если размеры или симметрия магнитной элементарной ячейки отличаются от соответствующих величин кристаллической ячейки. Подчеркнем, что положение этих максимумов не совпадает с положением максимумов рэлеевского рассеяния.

Выпишем теперь явный вид амплитуды мёссбауэровского рассеяния на ядре, помещенном в магнитное поле, для случая расщепленной линии рассеивателя. Используя результаты работы [4], амплитуду упругого мёссбауэровского рассеяния запишем в виде

$$f(\mathbf{n}, \mathbf{k}; \mathbf{H}; \mathbf{n}', \mathbf{k}') = C(\mathbf{n}^*\mathbf{n}_0)(\mathbf{n}'\mathbf{n}_0)\sqrt{II'}, \qquad (2)$$

где $\mathbf{n}_0$ и $\mathbf{n}_0'$ — векторы поляризации $\gamma$-квантов с волновыми векторами $\mathbf{k}$ и $\mathbf{k}'$, испускаемых рассеивающим ядром, находящимся в поле $\mathbf{H}$ в переходе, обратном поглощающему; $I$, $I'$ — интенсивности излучения соответствующих $\gamma$-квантов, $C$ — несущественный для нас фактор. Зависимость правой части выражения (2) от $\mathbf{H}$ входит через $n_0$, $n_0^*$, $I$, $I'$. В брэгговском максимуме с помощью (1) и (2) для вектора поляризации $\gamma$-кванта, рассеянного кристаллом чисто мёссбауэровским образом, получим

$$\mathbf{n}' = \frac{\sum_e \mathbf{n}'_{e0}(\mathbf{n}\mathbf{n}^*_{e0})\sqrt{I_e I'_e}\, e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\mathbf{r}_e}}{\left|\sum_e (\mathbf{n}'_{e0}\mathbf{n}^*_{e0})\sqrt{I_e I'_e}\, e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\mathbf{r}_e}\right|}. \qquad (3)$$

Обозначения в (3) те же, что и в формулах (1) и (2), а индекс выделяет величины, относящиеся к $l$-му направлению магнитного поля. Как следует из (3), информация о магнитном упорядочении содержится и в поляризации рассеянного излучения. При рассеянии неполяризованного пучка поляризационная матрица плотности рассеянного излучения может быть получена из (3) путем соответствующего усреднения.

Выше был рассмотрен случай полностью когерентного рассеяния. Учет факторов, приводящих к частичной некогерентности (дефекты кристалла, его тепловые

колебания, отличие от нуля спина основного состояния рассеивающих ядер и т. д.), как известно, качественно не меняет приведенных результатов.

Для того чтобы дать представление о масштабе углов, определяющих положение дифракционных максимумов при мёссбауэровском рассеянии, приведем значения минимальных брэгговских углов для рассеяния мёссбауэровского излучения с энергией 14,4 *кэв* от $^{57}Fe$ на монокристалле $\alpha$-$Fe_2O_3$. Первые два кристаллических максимума находятся при брэгговских углах $\sim$ 7,5 и 9°, а первые два магнитных максимума — при углах $\sim$5 и 6° *).

В настоящее время реализован только один метод прямого определения магнитных структур — *магнитная нейтронография*. Более того, распространено мнение, что это — единственно возможный способ прямого исследования магнитного упорядочения в кристаллах. Сказанное определяет интерес к методу, который покушается на монополию магнитной нейтронографии. В этой связи, естественно, возникает вопрос о достоинствах обсуждаемого метода, о его преимуществах и недостатках по сравнению с нейтронографией. Хотя окончательные выводы о перспективах метода в исследовании магнитных структур было бы преждевременно делать до обстоятельного исследования мёссбауэровской дифракции на магнитоупорядоченных кристаллах, однако уже сейчас можно отметить ряд его достоинств и недостатков общего характера. К числу достоинств относится избирательность метода (его чувствительность только по отношению к мёссбауэровским изотопам), что облегчает исследование сложных соединений. Другим большим достоинством является простота мёссбауэровской установки (для проведения нейтронографических исследований надо, как минимум, располагать реактором!). Чувствительность метода только к мёссбауэровским изотопам, отмеченная выше как достоинство, является в то же время и серьезным недостатком, так как ограничивает возможность исследования лишь структурами, содержащими мёссбауэровские изотопы. Для ряда мёссбауэровских переходов недостатком является малое естественное содержание соответствующего мёссбауэровского изотопа.

В целом следует ожидать, что в определенных условиях мёссбауэровская дифракция может оказаться эффективным методом прямого исследования магнитных структур.

В заключение отметим, что, помимо зависимости амплитуды мёссбауэровского рассеяния от направления магнитного поля на рассеивающем ядре, при наличии квадрупольного расщепления ядерных уровней амплитуда рассеяния зависит от градиента электрического поля на ядре. Последнее обстоятельство может оказаться полезным при исследовании сегнетоэлектрических структур с помощью дифракции мёссбауэровского излучения [5].

* *

В самое последнее время появилось сообщение [6] об экспериментальном обнаружении магнитного дифракционного максимума в мёссбауэровском рассеянии $\gamma$-излучения на монокристалле $\alpha$-$Fe_2O_3$. Как отмечают авторы, наличие магнитных дифракционных максимумов в мёссбауэровском рассеянии позволяет не только исследовать магнитную структуру кристалла, но и предоставляет удобную возможность для изучения динамических эффектов в мёссбауэровской дифракции.

*В. А. Беляков, Ю. М. Айвазян*

## ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. В. А. Беляков, Ю. М. Айвазян, Письма ЖЭТФ **7**, 477 (1968).
2. P. J. Black, J. P. Duerdoth, Proc. Phys. Soc. **84**, 169 (1964).
3. В. К. Войтовецкий, И. Л. Корсунский, А. Н. Новиков, Ю. Ф. Пажин, Препринт ИАЭ № 1478 (1967); ЖЭТФ **54**, 1361 (1968).
4. В. А. Беляков, ЖЭТФ **54**, 1162 (1968).
5. Ю. М. Айвазян, В. А. Беляков, ЖЭТФ **56** (1), 346 (1969).
6. Г. В. Смирнов, В. В. Скляровский, Р. А. Восканян, А. Н. Артемьев, Письма ЖЭТФ **9**, 123 (1969).

---

*) Авторы благодарны Г. В. Смирнову, обратившему их внимание на ошибочные величины этих углов, приведенные в [1].