

# Множественная структура двухимпульсного ядерного спинового эха в пленках кобальта

© В.Н. Бержанский, С.В. Капельницкий\*, В.С. Покатилов\*\*, С.Н. Полулях

Таврический национальный университет,  
95007 Симферополь, Украина  
E-mail: roton@tnu.crimea.ua

\*Российский научный центр "Курчатовский институт",  
123182 Москва, Россия  
E-mail: kapelnitsky@imp.kiae.ru

\*\*Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики (Технический университет),  
117454 Москва, Россия

(Поступила в Редакцию 26 января 2001 г.)

Исследованы условия формирования двухимпульсных сигналов эха ядер  $^{59}\text{Co}$  в тонких магнитных пленках при  $T = 4.2\text{ К}$ . В рамках известных механизмов проведено численное моделирование условий формирования дополнительных  $3\tau$ - и  $4\tau$ -сигналов эха ( $\tau$  — задержка между импульсами). Показано, что множественная структура эха ядер  $^{59}\text{Co}$  при  $T = 4.2\text{ К}$  обусловлена механизмом, в рамках которого на ядерную спиновую систему действует дополнительное сверхтонкое магнитное поле, пропорциональное ядерной намагниченности.

В ЯМР магнитоупорядоченных веществ широкое распространение получил метод ядерного спинового эха [1]. Для формирования эха к образцу прикладываются два импульса переменного магнитного поля, разделенных временным интервалом  $\tau$ . В момент времени  $t = 2\tau$  ядерная спиновая система формирует основной сигнал эха. В некоторых случаях возможно формирование множественной структуры эха, состоящей в появлении наряду с основным эхом  $2\tau$  дополнительных сигналов эха в моменты времени, пропорциональные  $\tau$ .

К настоящему времени известны три различных механизма формирования множественной структуры эха в магнитоупорядоченных веществах: (i) слишком большая по сравнению со временем спин-решеточной релаксации частота следования импульсных последовательностей [2]; (ii) многоквантовые эффекты в ЯМР квадрупольных ядер [3–6]; (iii) динамические эффекты, обусловленные магнитными сверхтонкими взаимодействиями [1,7].

В тонких магнитных пленках Co и Co–Fe множественная структура эха от ядер  $^{59}\text{Co}$  экспериментально наблюдалась авторами работы [8]. При этом сигналы эха формировались в моменты времени  $t = 2\tau, 3\tau$  и  $4\tau$ . На основе анализа зависимостей амплитуд сигналов эха от временного интервала  $\tau$  в диапазоне температур от 4.2 до 300 К в работе [3] делается вывод о формировании множественной структуры эха как вследствие сильной нелинейности ядерной спиновой системы, так и вследствие квадрупольных эффектов.

Цель настоящей работы — исследование условий формирования множественной структуры эха от ядер  $^{59}\text{Co}$  в пленках кобальта при температуре 4.2 К.

## 1. Эксперимент

Эксперименты проводились на тонких магнитных пленках на основе кобальта, использовавшихся в работе [9]. Сигналы эха наблюдались в отсутствие внешнего магнитного поля при температуре 4.2 К на импульсном ЯМР спектрометре в диапазоне частот 150–320 МГц. В результате проведенных экспериментов наряду с основным эхом  $2\tau$  обнаружены два дополнительных эха  $3\tau$  и  $4\tau$ .

Спектры ЯМР ядер  $^{59}\text{Co}$ , зарегистрированные по зависимости амплитуд основного и дополнительных эхо от частоты колебаний переменного магнитного поля в возбуждающих импульсах, приведены на рис. 1. Каждый из спектров нормирован на максимум амплитуды эха  $2\tau$ . Спектр эха  $2\tau$  отражает многофазность исследуемых образцов. При этом низкочастотная ( $\nu < 218\text{--}220\text{ МГц}$ ) часть спектра соответствует ГЦК фазе, а высокочастот-

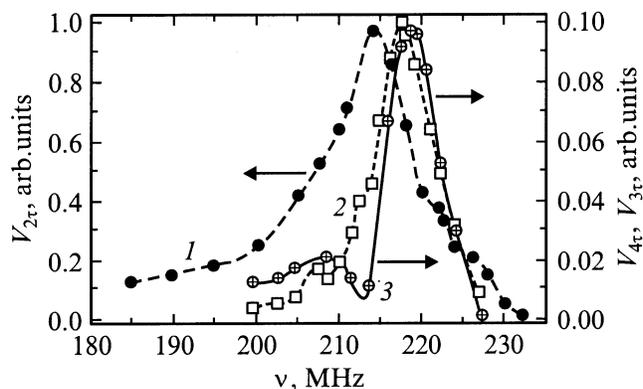
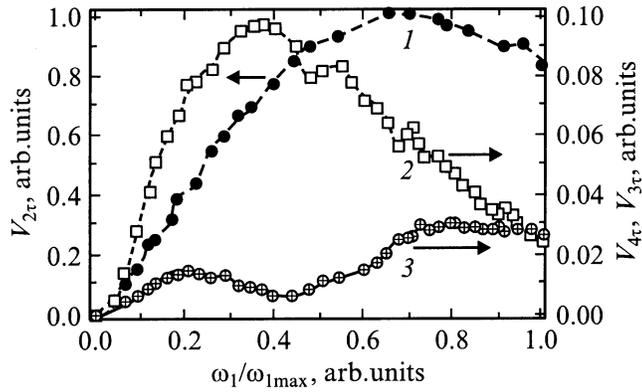


Рис. 1. Спектры ЯМР ядер  $^{59}\text{Co}$  в пленке кобальта при  $T = 4.2\text{ К}$ . 1 — спектр эха  $2\tau$ , 2 — спектр эха  $3\tau$ , 3 — спектр эха  $4\tau$ .



**Рис. 2.** Зависимости амплитуд основного  $V_{2r}$  и дополнительных  $V_{3r}$  и  $V_{4r}$  эхо от величины переменного магнитного поля при  $T = 4.2$  К. 1 — эхо  $2\tau$ , 2 — эхо  $3\tau$ , 3 — эхо  $4\tau$ .

ная часть спектра — ГПУ фазе [9]. Как следует из данных рис. 1, спектральные максимумы дополнительных сигналов эхо наблюдаются на частотах, соответствующих обоим фазам кобальта. При этом интенсивность дополнительных эхо на частотах ГПУ фазы выше, чем на частотах ГЦК фазы.

С целью анализа механизмов формирования дополнительных эхо исследовались зависимости амплитуд эхо от величины переменного магнитного поля  $\omega_1$  при равных длительностях обоих возбуждающих импульсов  $t_1 = t_2 = 1 \mu\text{s}$  (рис. 2). Каждая из зависимостей на рис. 2 нормирована на максимум амплитуды эхо  $2\tau$ . Основная особенность наблюдаемых зависимостей состоит в том, что величина переменного поля, соответствующая первому максимуму амплитуды эхо, убывает с ростом момента формирования эхо. При этом использованные амплитуды переменного магнитного поля не приводят к дополнительному уширению спектров, что указывает на то, что величина  $\omega_1$  не превышает ширины ЯМР спектра.

## 2. Обсуждение эксперимента

Первый из приведенных выше механизмов формирования эхо исключался экспериментально путем выбора частоты следования импульсных последовательностей, заведомо превышающей время спин-решеточной релаксации [9].

В случае второго механизма число дополнительных эхо и моменты формирования существенно зависят от типа неоднородного уширения спектральной линии [4]. Для квадрупольного ядра со спином  $I = 7/2$  формирование многоквантового эхо  $3\tau$  возможно в двух случаях. В первом случае неоднородность квадрупольной константы существенно больше, чем неоднородность магнитного поля. Тогда наряду с сигналами  $2\tau$  и  $3\tau$  должны наблюдаться эхо  $1.5\tau$ ,  $\frac{7}{3}\tau$ ,  $2.5\tau$ ,  $\frac{8}{3}\tau$ ,  $3.5\tau$ ,  $4\tau$ ,  $6\tau$  и  $7\tau$ . Численные расчеты зависимостей амплитуд эхо

от величины переменного магнитного поля, проведенные в соответствии с алгоритмом, обсуждавшимся в [6], показали, что интенсивности дополнительных эхо при одинаковых условиях возбуждения являются величинами одного порядка. Однако из всех возможных дополнительных сигналов экспериментально наблюдалось лишь эхо  $4\tau$ , а остальные отсутствовали. При этом объяснить отсутствие дополнительных эхо, формирующихся раньше эха  $4\tau$ , за счет релаксационного затухания не представляется возможным.

В том случае, когда доминирует магнитное неоднородное уширение, теоретически ожидаются эхо в моменты времени, кратные целому  $\tau$ , т.е. эхо  $2\tau$ ,  $3\tau$ , ...  $8\tau$ . При этом отсутствие эхо в моменты времени, большие  $4\tau$ , вообще говоря, можно объяснить затуханием за счет релаксации. Однако численные расчеты показали, что в любом случае величина  $\omega_1$ , соответствующая первому максимуму амплитуды отклика, для дополнительных эхо больше, чем для основного. Таким образом, экспериментально наблюдаемые особенности формирования множественной структуры эхо не согласуются с теоретически ожидаемыми, что указывает на непригодность механизма многоквантового эхо для интерпретации экспериментов.

Кроме того, в результате численного моделирования многоквантовых эхо получено, что максимум амплитуды дополнительных эхо наблюдается при величинах  $\omega_1$ , сравнимых с величиной квадрупольного расщепления ЯМР спектра  $\omega_q$ . Для ГПУ фазы величина  $\omega_q$  отлична от нуля в силу симметрии этой фазы. Таким образом, можно предположить, что для ЯМР  $^{59}\text{Co}$  имеет место ситуация селективного возбуждения спектральной линии  $\omega_1 < \omega_q$ . Тогда для качественного анализа поведения ядерной спиновой системы можно воспользоваться классическими уравнениями движения намагниченности. Отличие классического подхода от квантовомеханического состоит в том, что углы поворота (определяемые как произведение амплитуды поля  $\omega_1$  на длительность импульса), обеспечивающие максимум амплитуды эхо, будут разными для квадрупольного ядра и классической намагниченности [5,6]. Классические уравнения движения применимы и в том случае, когда квадрупольное расщепление отсутствует, как, например, в случае ЯМР ядер  $^{59}\text{Co}$  в ГЦК фазе.

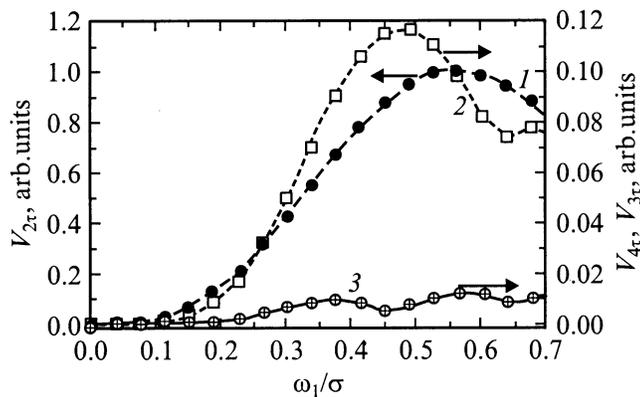
Классические уравнения движения изохроматической группы ядерных спинов

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = [\mathbf{m}\boldsymbol{\omega}] \quad (1)$$

описывают прецессию намагниченности  $\mathbf{m}$  вокруг поля  $\boldsymbol{\omega}$ , представленного в единицах частоты. При низких температурах магнитные сверхтонкие взаимодействия приводят к появлению поля [1,7]

$$\omega_{x,y} = \eta \cdot \mu_{x,y}, \quad (2)$$

где  $\mu_{x,y} = \int_{-\infty}^{\infty} g(\omega)m_{x,y}d\omega$  — интегральная поперечная намагниченность,  $g(\omega)$  — функция, описываю-



**Рис. 3.** Расчетные зависимости амплитуд сигналов эхо от величины переменного магнитного поля при  $\eta/\sigma = 0.125$ ,  $t_1 = t_2 = 4\pi/3\sigma$ . 1 — эхо  $2\tau$ , 2 — эхо  $3\tau$ , 3 — эхо  $4\tau$ .

шая неоднородное уширение спектральной линии ЯМР,  $\eta$  — параметр, определяемый магнитной восприимчивостью и величиной магнитных сверхтонких взаимодействий.

При численном моделировании двухимпульсного отклика неоднородно уширенной ядерной спиновой системы промежутки времени, соответствующий наблюдению над системой, разбивался на временные интервалы длительностью  $\Delta t$ . В течение времени  $\Delta t$  поле считалось неизменным и величина сверхтонкого поля (2) определялась интегральной ядерной намагниченностью к началу этого интервала. Во время действия импульсов наряду с полем (2) учитывалось внешнее переменное поле  $\omega_1$ . При решении уравнений (1) полагалось, что в течение временного интервала  $\Delta t$  намагниченность изохроматической группы ядерных спинов с расстройкой  $\Delta\omega$  поворачивается на угол  $\alpha = \Delta t((\omega_1 + \eta\mu_x)^2 + \eta^2\mu_y^2 + \Delta\omega^2)^{1/2}$  вокруг эффективного магнитного поля во вращающейся системе координат [1,2].

В результате численных расчетов получено, что наряду с основным эхом  $2\tau$  действительно появляются дополнительные эхо в моменты времени, целократные  $\tau$ . Механизм появления этих эхо состоит в том, что, благодаря полю (2), сигнал эха выступает в качестве возбуждающего импульса. Интересно отметить, что, если в выражении (2) вместо интегральной ядерной намагниченности  $\mu_{x,y}$  для каждой изохроматической группы спинов использовать ее собственную поперечную намагниченность [1], дополнительные эхо в расчетах не реализуются. Более того, увеличение параметра  $\eta$  в этом случае приводит к подавлению амплитуды основного эха.

В качестве примера на рис. 3 приведена расчетная зависимость амплитуд основного и дополнительных эхо при использовании в качестве  $g(\omega)$  функции Гаусса с дисперсией  $\sigma = 1$ . Каждая из зависимостей рис. 3 нормирована на максимум амплитуды эха  $2\tau$ . Как следует из данных рис. 3, в рассматриваемом случае

действительно первый максимум амплитуды дополнительных эхо может быть получен при амплитудах переменного поля, меньших, чем первый максимум амплитуды эха  $2\tau$ . Амплитуда возбуждения, соответствующая первому максимуму эха, падает с увеличением времени момента формирования эха. Кроме того, расчетная амплитуда дополнительных эхо (рис. 3), так же как и экспериментальных, на порядок меньше амплитуды основного эха.

Величина поля (2), ответственного за формирование множественной структуры эха, прямо пропорциональна ядерной намагниченности. В случае двухфазных пленок кобальта основной является ГПУ фаза [9], следовательно, ее ядерная намагниченность больше, чем в ГЦК фазе. Этим объясняется большая амплитуда дополнительных эхо на частотах ЯМР ГПУ фазы по сравнению с ГЦК фазой (рис. 1).

Основное различие экспериментальных (рис. 2) и расчетных (рис. 3) результатов состоит в том, что увеличение амплитуды переменного магнитного поля приводит к более быстрым изменениям амплитуды экспериментальных эхо по сравнению с расчетными. Это обусловлено тем, что при одних и тех же длительностях возбуждающих импульсов максимум амплитуды эха от квадрупольных ядер достигается при амплитудах переменного магнитного поля, меньших, чем в случае классической намагниченности [5]. Кроме того, исследованные образцы характеризуются высокой неоднородностью коэффициента усиления ЯМР, что не учитывалось в расчетах и является дополнительным источником различий между экспериментальными и расчетными зависимостями.

Таким образом, в случае третьего механизма имеет место хорошее качественное согласие расчетных и экспериментальных результатов. Для более детального анализа требуется решать не классические (1), а квантово-механические уравнения движения намагниченности, учесть неоднородность коэффициента усиления ЯМР [9], использовать не модельную гауссову, а реальную функцию формы линии  $g(\omega)$ , рассмотреть затухание амплитуды эха с ростом задержки между импульсами. Все это требует больших затрат машинного времени, делающих расчет нереальным.

Таким образом, сравнение результатов, проведенных в рамках известных механизмов, с экспериментом показывает, что для формирования множественной структуры эха ядер  $^{59}\text{Co}$  в тонких магнитных пленках при 4.2 К предпочтительным является механизм, основанный на динамических сверхтонких взаимодействиях. Роль электрических квадрупольных взаимодействий, по-видимому, состоит как в появлении дополнительных осцилляций в зависимостях амплитуд эха от величины переменного магнитного поля, так и в том, что экспериментально наблюдаемая амплитуда эха нарастает с увеличением амплитуды переменного магнитного поля быстрее расчетной.

## Список литературы

- [1] М.И. Куркин, Е.А. Туров. ЯМР в магнитоупорядоченных веществах и его применения. Наука, М. (1990). 244 с.
- [2] А. Абрагам. Ядерный магнетизм. ИИЛ, М. (1963). 551 с.
- [3] Г.Н. Абеляшев, В.Н. Бержанский, Н.А. Сергеев, Ю.В. Федотов. ЖЭТФ **94**, 227 (1988).
- [4] В.И. Цифринович. ЖЭТФ **94**, 208 (1988).
- [5] R.P. Man. Phys. Rev. **B52**, 9418 (1955).
- [6] С.Н. Полулях, Н.А. Сергеев, А.А. Шемяков. ФТТ **42**, 1628 (2000).
- [7] А.С. Боровик-Романов, Ю.М. Буньков, Б.С. Думеш и др. УФН **142**, 537 (1984).
- [8] В.О. Голуб, В.В. Котов, А.Н. Погорелый, Ю.А. Поделец. ФТТ **31**, 48 (1989).
- [9] В.С. Покатилов, С.В. Капельницкий, В.Н. Каразеев. ФТТ **32**, 1982 (1990).