

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

5457 / 82

P14-82-605

15/4-32

М.П.Баландин, В.С.Евсеев, Т.Н.Мамедов,  
В.С.Роганов, М.В.Фронтасьева

ИССЛЕДОВАНИЕ ДЕПОЛЯРИЗАЦИИ МЮОНОВ  
ПРИ МАГНИТНОМ ФАЗОВОМ ПЕРЕХОДЕ В  $V_2 O_3$

Направлено в "Журнал экспериментальной  
и теоретической физики"

1982

Изучению поведения мюонных атомов в твердых телах в последние годы уделяется все большее внимание<sup>/1-3/</sup>. Особый интерес проявляется к исследованию магнитных свойств твердого тела путем наблюдения прецессии и релаксации квазисвободного спина мюона в мезоатомах<sup>/4-8/</sup>. Мезоатом, образованный при кулоновском захвате мюона атомом  $Z$ , в твердом теле является примесным ( $Z-1$ ) атомом, и на спин мюона действуют магнитные поля, имеющиеся в твердом теле в месте расположения мезоатома. Наблюдая прецессию спина мюона в поперечном /относительно направления спина/ магнитном поле, остаточную поляризацию мюонов можно определить по коэффициенту асимметрии во временных спектрах электронов от распада мюонов в мезоатомах / $\mu^-$  SR-метод/. Уменьшение коэффициента асимметрии во времени характеризует скорость релаксации мюонного спина  $\lambda_p$ .

В настоящей работе исследовались изменения остаточной поляризации отрицательных мюонов, захваченных атомами кислорода окисла  $V_2O_3$ , в интервале температур 77-300 К. Измерена также остаточная поляризация  $\mu^+$ -мезонов при температуре 77 и 300 К.

Для окисла  $V_2O_3$  хорошо известен фазовый переход вблизи температуры  $T_H = 168$  К /температура Нееля/<sup>/9-11/</sup>. Выше этой температуры  $V_2O_3$  является проводником и обладает парамагнитными свойствами, тогда как ниже 168 К он является антиферромагнетиком и его проводимость уменьшается в  $10^6$  раз. При фазовом переходе имеется скачок магнитной восприимчивости и меняется кристаллическая структура этого окисла.

Эксперименты выполнены на сепарированном мюонном пучке синхротрона ЛЯП ОИЯИ. Аппаратура для измерений и обработка результатов описаны ранее<sup>/1,5/</sup>. Поляризованные мюоны останавливались в мишени из поликристаллического  $V_2O_3$  толщиной  $3,7$  г·см<sup>-2</sup>, помещенной в поперечное магнитное поле напряженностью около 120 Э. Мишень располагалась в криостате, температура в котором поддерживалась с точностью  $\pm 1^\circ$ .

Электроны от распада мюонов в мезоатомах кислорода и ванадия разделялись по времени жизни  $\tau_0$  и  $\tau_V$  мюонов. Распределение  $N(t)$  электронов от распада мюонов в кислороде /после учета постоянного во времени фона и экспонент, обусловленных временем жизни мезоатомов/ имеет вид:

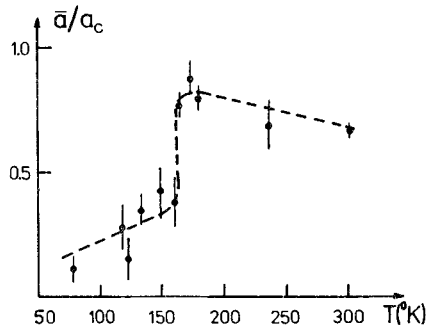
$$N(t) \sim [1 + a \exp(-t\lambda_p) \cos(\omega t + \delta)],$$

где  $a$  - коэффициент асимметрии электронов от распада мюонов в мезоатоме кислорода при  $t=0$  /время остановки мюона в мишени/,

Таблица 1

Зависимость от температуры остаточной поляризации отрицательных /в кислороде/ и положительных мюонов в окисле  $V_2O_3$

T (K)	$\mu^-$ -мезоны $\bar{a}(T) \cdot a_c^{-1}$ [ $a_c = (4,8 \pm 0,1)\%$ ]	$\mu^+$ -мезоны $\bar{a}(T) \cdot a_b^{-1}$ [ $a_b = (28,6 \pm 0,4)\%$ ]
300	$0,66 \pm 0,03$	$0,77 \pm 0,01$
236	$0,69 \pm 0,10$	
180	$0,80 \pm 0,05$	
173	$0,88 \pm 0,07$	
164	$0,77 \pm 0,05$	
160	$0,38 \pm 0,10$	
149	$0,43 \pm 0,09$	
133	$0,35 \pm 0,06$	
123	$0,15 \pm 0,09$	
118	$0,28 \pm 0,09$	
77	$0,11 \pm 0,05$	$0,19 \pm 0,02$



Остаточная поляризация  $\bar{a} a_c^{-1}$  отрицательных мюонов в мезоатоме кислорода  $V_2O_3$  /по отношению к графиту/ в зависимости от температуры.

$\lambda_p$  - скорость релаксации спина мюона в мезоатоме,  $\omega$  - частота ларморовской прецессии квазисвободного спина мюона в поперечном магнитном поле,  $\delta$  - начальная фаза прецессии. Временные спектры электронов распада обрабатывались на ЭВМ методом наименьших квадратов.

Результаты измерений величины  $a$  даны в табл.1 и на рисунке по отношению к  $a_c$  в графите для  $\mu^-$ -мезонов и по отношению к  $a_b$  в бромформе для  $\mu^+$ -мезонов. Приведенные в таблице величины  $\bar{a} a_c^{-1} (\bar{a} a_b^{-1})$  получены при значении  $\exp(-t\lambda_p) = 1$ . Это означает, что в случае  $\lambda_p \neq 0$  производится усреднение  $a a_c^{-1} (a a_b^{-1})$  по времени измерения. Значение  $a a_c^{-1}$  равно отношению остаточных поляризаций  $p p_c^{-1}$  в кислороде окисла и графите. В величины  $a$  вводились поправки на остановки мюонов в сцинтилляционном счетчике перед мишенью и в стенках криостата, как это указано в /1/.

Из представленных данных следует, что выше температуры фазового перехода наблюдается остаточная поляризация на частоте прецессии свободного спина мюонов обоих знаков, и ее значения близки к максимальному. Остаточная поляризация отрицательных мюонов вблизи точки фазового перехода в зависимости от температуры меняется скачкообразно. При температуре жидкого азота на частоте прецессии свободного спина мюона наблюдается отличная от нуля остаточная поляризация положительных и отрицательных мюонов.

После кулоновского захвата мюона атомом кислорода и последующих каскадных переходов мюона образуется мезоатом  $Z-1=7$  /мезоазот/, у которого может иметься отличный от нуля магнитный момент внешней электронной оболочки. Сверхтонкое взаимодействие этого момента с магнитным моментом мюона должно привести к частичной деполяризации спина мюона за время  $\sim 10^{-10}$  с и к отсутствию остаточной поляризации на частоте прецессии квазисвободного спина мюона. Факт наблюдения ненулевой остаточной поляризации на этой частоте свидетельствует о наличии механизмов, препятствующих осуществлению деполяризации мюона. Такими механизмами могут быть: взаимодействие мезоатома с электронами проводимости, быстрая химическая реакция мезоатома с образованием диамагнитных продуктов, занятие им примесного акцепторного уровня /1,6,14/.

Для поведения спина положительного мюона в веществе развитая /15,16/ феноменологическая теория, в которой остаточная поляризация  $p(\nu, \omega_0, \tau)$  определяется частотой  $\nu$  обменов спина электрона мюония в веществе, временем  $\tau$  вступления мюония в химическую реакцию, частотой  $\omega_0$  сверхтонкого взаимодействия мюона и электрона мюония в веществе и зависит от соотношения этих параметров. Для отрицательных мюонов подобная зависимость  $p(\nu, \omega_0, \tau)$  на основе /15,16/ дана в /17/ для мезоатома в слабом магнитном поле.

В металлической фазе  $V_2O_3$  частота обмена спинами определяется числом электронов в неспаренных спинами /18/ /плотностью спиновых состояний вблизи поверхности Ферми/ и, если использовать для оценки  $\nu$  выражение /19/ и данные /10,20/, то  $\nu \sim 7 \cdot 10^{12} \text{ с}^{-1}$ .

Для частоты сверхтонкого взаимодействия в мезоатоме кислорода ранее /14/ нами использовалось значение  $\omega_0 = 7 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$ , довольно близко совпадающее с расчетами /21/. В твердом теле эта величина может быть меньше /15,19/, вследствие диэлектрического экраниро-

вания, изменения размеров мезоатома в решетке, возможного существования его в решетке в виде отрицательного иона<sup>/22/</sup> и т.п. Измерения  $\omega_0$  для мюония<sup>/17,19/</sup> показали, что в некоторых веществах ее значения меньше, чем для мюония в вакууме. Таким образом в металлической фазе  $\nu \gg \omega_0$ . Это фактически означает отсутствие деполаризации за счет сверхтонкого взаимодействия мюона с электронами в мезоатоме. Большая величина остаточной поляризации в действительности наблюдается в эксперименте/табл.1/. В металлической фазе  $V_2O_3$  измеренная величина остаточной поляризации практически не зависит от температуры и близка к значению в графите. Она также не противоречит величине, ожидаемой из эмпирической Z-зависимости, остаточной поляризации в металлах<sup>/5/</sup>.

При температуре 300 К наблюдается релаксация спина мюона, скорость которой составляет  $0,34 \pm 0,05$  мкс<sup>-1</sup>. Соответственно величина  $\bar{a}a_c^{-1} = 1,10 \pm 0,02$ . При других температурах ошибка измерений больше и выявить температурную зависимость  $\lambda_p$  не представляется возможным.

Причиной релаксации спина мюона в парамагнитной фазе может быть как его взаимодействие с электронами проводимости, так и дипольные взаимодействия со спинами парамагнитных ионов металла. Возможны лишь очень приближенные оценки<sup>/18,19/</sup>  $\lambda_p$ , которые дают величину, близкую к наблюдаемой. Однако неопределенность  $\lambda_p$  велика вследствие сильной ее зависимости от величины магнитных моментов ионов, от расстояния мезоатома до ближайшего иона и т.д.

Тот факт, что при  $T < T_N$   $V_2O_3$  является антиферромагнетиком, объясняет скачок в зависимости  $\bar{a}(T)a_c^{-1}$ . Действительно, как отмечено в<sup>/19/</sup>, при  $T \rightarrow T_N$  частота осцилляций атомных спинов эффективно уменьшается и сильно возрастает  $\lambda_p$  при упорядочении спинов в антиферромагнитной фазе, т.е. остаточная поляризация становится близкой к нулю. Близкая к нулю остаточная поляризация измерена в ферромагнетиках Fe<sup>/5/</sup> и Ni<sup>/12/</sup> и антиферромагнитном Cr<sup>/13/</sup> металлах. Нулевая остаточная поляризация наблюдалась также для антиферромагнитной фазы в редкоземельных металлах<sup>/19/</sup> в экспериментах с положительными мюонами.

Однако остается невыясненным вопрос, почему в антиферромагнитной фазе в  $V_2O_3$  остаточная поляризация все же отличается от нуля на частоте квазисвободного спина мюона. Это, по-видимому, означает наличие в  $V_2O_3$  областей с неупорядоченной магнитной структурой вследствие использования поликристаллической мишени. Об этом свидетельствует, в частности, наличие заметной парамагнитной восприимчивости в антиферромагнитной фазе<sup>/10/</sup>, которая обусловлена примесями и нарушением структуры<sup>/11/</sup>. Тогда спины мюонов в мезоатомах, находящихся в областях неупорядоченной магнитной структуры, будут прецессировать с частотой, определяемой внешними магнитными полями. Таким образом в зависимости от доли мюонов, попавших в эти области, следует ожидать ненулевой

остаточной поляризации на частоте, квазисвободного спина мюона в антиферромагнитной фазе.

Существенное изменение величины  $\bar{a}a_c^{-1}$  при  $T = T_N$  /с точностью несколько градусов/ свидетельствует о том, что локальное повышение температуры вокруг мезоатома /за счет радиационного разрушения среды в треке на конце пробега мюона, за счет  $\gamma$ -квантов и оже-электронов при переходе мезоатома в основное состояние/ либо невелико /несколько градусов/, либо это повышение происходит за время, существенно отличающееся от времени сверхтонкого взаимодействия магнитных моментов мюона и электрона в мезоатоме кислорода<sup>1</sup>.

В металлической фазе  $V_2O_3$  имеет значительную парамагнитную восприимчивость, и можно ожидать появления сдвига Найта частоты прецессии спина мюона в магнитном поле, поскольку величина сдвига линейно зависит от  $\kappa$ <sup>/23/</sup>. Сдвиг частоты Найта наблюдался в мезоатоме кислорода /в MnO<sup>/24/</sup> и палладия<sup>/25/</sup>, а в мезоатоме кремния измерена его зависимость от  $\kappa$ <sup>/4/</sup> /в MnSi/. Данные по поведению примесного атома Z=7 в  $V_2O_3$  отсутствуют, и ожидаемую величину сдвига оценить трудно. В пределах экспериментальной точности / $\pm 0,2\%$ / нами не найдено различия в частотах прецессии квазисвободного спина в мезоатоме кислорода  $V_2O_3$  в парамагнитной фазе.

При фазовом переходе в  $V_2O_3$  происходит изменение кристаллической структуры окисла, в непроводящей фазе возрастает расстояние между ионами ванадия, изменяются постоянные решетки<sup>/10/</sup>. Эти обстоятельства могут привести к изменению вероятности захвата мюонов атомами V или O, поскольку ранее наблюдалась зависимость атомного захвата от структуры вещества. Однако в фазовом переходе среднее расстояние между атомами V и O остается практически неизменным<sup>/10/</sup>, и это, по-видимому, определило установленное нами постоянство отношения атомного захвата мюонов  $\Delta(V/O)$  в V и O в зависимости от температуры. Для каждого значения температуры /табл.1/ $\Delta(V/O)$  определялось с точностью в несколько процентов. Среднее из этих измерений  $\Delta(V/O) = 2,43 \pm 0,05$ , причем максимальное отклонение от этой величины не превосходило 5%. Полученное значение  $\Delta(V/O)$  согласуется с величиной  $2,19 \pm 0,18$ , найденной ранее при комнатной температуре<sup>/26/</sup>.

Как уже отмечалось выше, при упорядоченной магнитной структуре /для антиферромагнетиков ниже температуры Нееля/ в слабых внешних магнитных полях ожидаются небольшие значения остаточной поляризации. В табл.2 приведены значения остаточной поляризации в мезоатомах кислорода при температуре 300 К и 77 К для антиферромагнитных окислов, полученные нами ранее<sup>/1,6,27/</sup> и в данной работе, а также величины  $T_N$  температуры Нееля<sup>/11/</sup>. Из таблицы видно, что близкие к нулю значения остаточной поляризации получены при температуре ниже  $T_N$  для всех окислов в таблице. Для температур выше  $T_N$  измеренные величины  $\bar{a}a_c^{-1}$  заметно отличаются от нуля /0,4-1/, и действуют механизмы компенсации парамагнетиз-

Таблица 2

Остаточная поляризация отрицательных мюонов в мезоатоме кислорода для антиферромагнитных окислов при комнатной температуре и температуре жидкого азота, значения  $\alpha$  и  $\bar{\alpha}$  температуры Нееля и скорости релаксации спина мюона  $\lambda_p$

Окисел	$T_N$ (К)	T (К)	$\alpha(T) \cdot a_c^{-1}$	$\bar{\alpha}(T) \cdot a_c^{-1}$	$\lambda_p, \text{мкс}^{-1}$
$V_2O_3$	167	300	$1,10 \pm 0,08$	$0,66 \pm 0,03$	$0,34 \pm 0,05$
		77		$0,11 \pm 0,05$	
$Cr_2O_3$	308	300		$0,12 \pm 0,06$	
$Mn_2O_3$	80	300	$0,42 \pm 0,05$	$0,28 \pm 0,04$	$0,28 \pm 0,12$
		77		$0,04 \pm 0,02$	
$MnO$	122	300	$0,10 \pm 0,19$	$0,42 \pm 0,06$	$0,66 \pm 0,18$
		77		$0,05 \pm 0,01$	
$Fe_2O_3$	953	300		$0,02 \pm 0,05$	
$FeO$	198	300		$0,00 \pm 0,04$	
$COO$	291	300	$0,73 \pm 0,14$	$0,31 \pm 0,04$	$0,53 \pm 0,14$
		77		$0,05 \pm 0,07$	
$NiO$	523	300		$0,06 \pm 0,08$	
$CaO$	230	300		$0,75 \pm 0,05$	
		77		$0,15 \pm 0,07$	

ма электронной оболочки мезоатома кислорода, о которых говорилось выше. Исключение составляет FeO, где даже выше  $T_N$  остаточная поляризация близка к нулю. Однако для FeO данные по магнитным свойствам недостоверны в связи с нестабильностью соединений с  $Fe^{+2/11}$ , и в используемой мишени  $T_N$  может отличаться от приведенной в табл.2.

Нами была измерена остаточная поляризация  $\mu^+$ -мезонов в  $V_2O_3$  ниже и выше /77 и 300 K/ температуры магнитного фазового перехода на частоте прецессии спина мюона. Результаты приведены в табл.1. Из нее видно, что для  $T < T_N$  остаточная поляризация невелика. Выше  $T_N$  остаточная поляризация близка к 1 / а  $a_0^{-1} = 0,96 \pm 0,02$ /. При этом  $\lambda_p = 0,11 \pm 0,01 \text{ мкс}^{-1}$ . Таким образом и в этом случае значительное изменение магнитных свойств вещества приводит к существенному изменению остаточной поляризации положительных мюонов.

Остаточная поляризация положительных мюонов в ферромагнитных и антиферромагнитных изоляторах исследовалась и в ряде других работ<sup>/8,28/</sup>. Например, было найдено, что для  $Cr_2O_3$ <sup>/28/</sup> величины асимметрии а при температуре ниже  $T_N$  существенно меньше, чем а при  $T > T_N$ . Для  $NiO$ <sup>/28/</sup> измерялся коэффициент асимметрии при температуре 300 К, которая ниже  $T_N$ . Оказалось, что значение а близко к нулю.

Релаксация спина положительных мюонов в  $V_2O_3$  в парамагнитной фазе обусловлена теми же причинами, что и в случае отрицательных мюонов /см. выше/. Однако скорость релаксации спина положительных мюонов меньше, чем для  $\mu^-$ -мезонов. Это различие может быть обусловлено тем, что  $\mu^+$  /или мюоний/ диффундирует по кристаллической решетке<sup>/18/</sup>, а диффузия мезоатома практически отсутствует.

Настоящая работа показывает, что отрицательные мюоны могут быть использованы для идентификации магнитного фазового перехода парамагнетик - антиферромагнетик /парамагнетик - ферромагнетик/. Можно надеяться, что более детальное исследование остаточной поляризации и релаксации спинов мюонов откроет новые возможности для изучения фазовых переходов.

Авторы считают своим приятным долгом выразить искреннюю признательность В.И.Кудинову, В.Н.Рыбакову, Ю.В.Обухову и И.М.Савельеву за помощь в подготовке и проведении настоящего эксперимента.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Джураев А.А. и др. ЖЭТФ, 1972, 62, с.1425.
2. Yamazaki T. et al. Phys.Scripta, 1975, 11, p.133.
3. Горелкин В.Н., Смилга В.П. ЖЭТФ, 1974, 66, с.1201.
4. Nagamine K. Hyperfine Interactions, 1979, 6, p.347.
5. Евсеев В.С. и др. ИАЭ-3342, М., 1980.
6. Евсеев В.С. и др. Письма в ЖЭТФ, 1978, 27, с.249.
7. Горелкин В.Н., Котова Л.П. ЖЭТФ, 1981, 80, с.1676.
8. 1. Int. Topical Meeting on  $\mu$ SR. In: Hyperfine Interactions, 1979, vol.6, No.1-4, p.1-450.
9. Morin F.J. Phys.Rev.Lett., 1959, 3, p.34.
10. Мотт Н.Ф. Переходы металл-изолятор. "Наука", М., 1979.
11. Гуденаф Д. Магнетизм и химическая связь. Металлургия, М., 1968.
12. Nagamine K. et al. Hyperfine Interactions, 1976, 2, p.407.
13. Ignatenko A.E. Nucl.Phys., 1961, 23, p.75.
14. Evseev V.S. In: Muon Physics. Academic Press, N.Y. 1975, vol.3, p.235.
15. Носов В.Г., Яковлева И.В. ЖЭТФ, 1962, 49, с.1751.
16. Ивантер И.Г., Смилга В.П. ЖЭТФ, 1968, 54, с.559; ЖЭТФ, 1968, 55, с.1521.

17. Роганов В.С. ОИЯИ, Д-6840, Дубна, 1973, с.188.
18. Смилга В.П. Мезоны в веществе. ОИЯИ, Д1,2,14-10980, Дубна, 1977, с.229.
19. Никольский Б.А. Мезоны в веществе. ОИЯИ, Д1,214-10908, Дубна, 1977, с.246.
20. Feinleib J., Paul W. Phys.Rev., 1967, 155, p.841.
21. Таммет Э.В. ЯФ, 1976, 23, с.1042.
22. Kamimura H., Natsume Y. Hyperfine Interaction, 1979, 6, p.357.
23. Киттель Ч. Введение в физику твердого тела. "Наука", М., 1978.
24. Nagamiya S. et al. Phys.Rev.Lett., 1975, 35, p.308.
25. Yamazaki T. et al. Phys.Rev.Lett., 1979, 42, p.1241.
26. Knight J.D. et al. Phys.Rev., 1976, 13A, p.43.
27. Евсеев В.С. и др. Мезоны в веществе. ОИЯИ, Д1,2,14-10908, Дубна, 1977, с.322.
28. Brewer J.H. et al. In: Muon Physics, Academic Press, N.Y., 1973, vol.3, p.4.

Рукопись поступила в издательский отдел  
6 августа 1982 года.

Баландин М.П. и др.

P14-82-605

Исследование деполяризации мюонов  
при магнитном фазовом переходе в  $V_2O_3$

Методом прецессии спина в магнитном поле исследована температурная зависимость остаточной поляризации  $\mu^-$ -мезонов в мезоатоме кислорода, образующемся в  $V_2O_3$ , и обнаружен ее скачок при температуре Нееля. Найдена также релаксация спина  $\mu^\pm$ -мезонов в  $V_2O_3$ .

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1982

Balandin M.P. et al.

P14-82-605

Investigation of Muon Depolarization  
at Magnetic Phase Transition in  $V_2O_3$

By the method of spin precession in the magnetic field the temperature dependence of residual polarization of  $\mu^-$ -mesons in oxygen mesic atom produced in  $V_2O_3$  is investigated. Its jump at Neel's temperature is discovered. The  $\mu^\pm$ -meson spin relaxation in  $V_2O_3$  is also found.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1982

Перевод О.С.Виноградовой.