объединенный
институт
ядерных
исследований
дубна

Р17-88-269

В.И.Юкалов

МАГНИТНЫЕ АНОМАЛИИ
ПРИ ЭФФЕКТЕ МЁССБАУЭРА

Направлено в Оргкомитет Международной конференции по физике переходных металлов, Киев, май 1988 г.

1988

В ряде переходных металлов и в некоторых их соединениях, например Ni, NiO, MnO, $Co_{1-x}Pd_x$, Mn_2Sn, $FeSn_2$, $Y_3Fe_5O_{12}$, $Tb_3Fe_5O_{12}$, ниже температуры перехода в магнитное состояние вместе с появлением намагниченности наблюдалось аномальное увеличение площади под мессбауровским спектром, составляющее 20 ÷ 50% от площади спектра при парамагнитном состоянии металла. Обзор соответствующих экспериментов можно найти в книге[1]. Увеличение площади спектра связывалось со значительным изменением фононных характеристик при возникновении магнитного порядка, в частности, с сильным увеличением температуры Дебая и соответствующим уменьшением среднего квадратичного отклонения. Однако такая интерпретация противоречит другим экспериментам, в которых фононные характеристики измеряются непосредственно — с помощью рассеяния нейтронов, измерения скорости звука, исследования упругих и тепловых величин. Во всех этих экспериментах при переходе из парамагнитного в магнитное состояние никаких аномалий решеточных свойств не наблюдается. Не было обнаружено никаких магнитных аномалий и при иной постановке самого мессбауэровского эксперимента, в так называемой геометрии источника, когда внутрь исследуемого вещества внедрялся радиоактивный источник, а поглощающие мессбауэровские ядра находились вне вещества. Увеличение площади спектра наблюдалось только при экспериментах в геометрии поглотителя, когда мессбауэро кие ядра содержались в исследуемом веществе.

Для выяснения причины этого противоречия был проведен расчет величин, входящих в площадь спектра в геометрии поглотителя:

$$S_{abs} \sim \sigma_{abs} f_M,$$

здесь σ_{abs} — сечение поглощения мессбауэровского ядра, интенсивность мессбауэровского спектра

$$f_M = \exp(-2W),$$

где фактор

$$2W = \frac{k_0^2}{6mN} \sum_{ks} \frac{1}{\omega_{ks}} \langle (b_{ks} + b^+_{-ks})(b_{-ks} + b^+_{ks}) \rangle ;$$

все обозначения достаточно стандартны, поэтому для краткости не объясняются. Полный гамильтониан системы состоит из двух слагаемых:

$$H = H_{lat} + H_{rad},$$

первое содержит решеточные переменные, фононы и спины, второе — внутренние степени свободы излучающих ядер и фотоны. Решеточный гамильтониан имеет обычный вид:

$$H_{lat} = \sum_i \frac{\vec{p}_i^{\,2}}{2m} + \frac{1}{2} \sum_{ij} U(\vec{R}_i - \vec{R}_j) - \sum_{ij} I(\vec{R}_i - \vec{R}_j)\, \vec{S}_i \vec{S}_j .$$

Взаимодействия в нем разлагаются по отклонениям и вводятся фононы. В дальнейшем используются сокращенные обозначения:

$$S_{ij} \equiv \vec{S}_i \vec{S}_j , \qquad \vec{r}_{ij} \equiv \vec{r}_i - \vec{r}_j ,$$

$\vec{r}_i$ — координата узла,

$$\vec{R}_i - \vec{R}_j = \vec{r}_{ij} + \vec{u}_{ij} .$$

Для вычисления фактора W проделывалась следующая процедура. Применялось операторное преобразование

$$b_{ks} b_{k's'} S_{ij} = A_1 + A_2 b_{ks} b_{k's'} + A_3 S_{ij} + A_4 b_{ks} S_{ij} + A_5 b_{k's'} S_{ij} ,$$

и аналогичное для конструкции $b^+_{ks} b_{k's'} S_{ij}$. Коэффициенты $A_1, A_2, \dots A_{10}$ находились из вариационного принципа Гиббса — Боголюбова. Далее привлекалось каноническое преобразование Вакса — Ларкина, разделяющее фононные и спиновые переменные:

$$b_{ks} \to b_{ks} + \sum_{ij} B^{ks}_{ij} S_{ij} , \quad B^{ks}_{ij} = \sum_\mu \bar{I}^\mu_{ij} \frac{e^\mu_{ks}\, e^{i\vec{k}\vec{r}_{ij}}}{\sqrt{2mN\omega^3_{ks}}} ,$$

$$\bar{I}^\mu_{ij} \equiv I^\mu_{ij} + \sum_{ks} \sum_\nu I^{\mu\nu}_{ij} \frac{e^\nu_{ks}\, e^{i\vec{k}\vec{r}_{ij}}}{\sqrt{2mN\omega_{ks}}} (\langle b_{ks}\rangle + \langle b^+_{-ks}\rangle),$$

$$I^\mu_{ij} \equiv \partial I(\vec{r}_{ij})/\partial r^\mu_{ij} , \qquad I^{\mu\nu}_{ij} \equiv \partial^2 I(\vec{r}_{ij})/\partial r^\mu_{ij} \partial r^\nu_{ij} .$$

Фононный спектр определяется уравнением

$$\frac{1}{mN}\sum_{ij}\sum_{\mu}\Phi_{ij}^{\mu\nu}\, e^{i\vec{k}\vec{r}_{ij}}\, e_{ks}^{\mu} = \omega_{ks}^{2}\, e_{ks}^{\nu},$$

$$\Phi_{ij}^{\mu\nu} = \frac{1}{2}U_{ij}^{\mu\nu} - I_{ij}^{\mu\nu}\langle S_{ij}\rangle, \quad U_{ij}^{\mu\nu} \equiv \partial^{2} U(\vec{r}_{ij})/\partial r_{ij}^{\mu}\,\partial r_{ij}^{\nu}.$$

В результате решеточный гамильтониан представляется в виде суммы

$$H_{lat} = H_{stat} + H_{phon} + H_{spin},$$

в которой

$$H_{stat} = \frac{1}{2}NU + \sum_{ij}\sum_{\mu\nu} I_{ij}^{\mu\nu}\left(\frac{1}{2}\langle u_{ij}^{\mu}u_{ij}^{\nu}\rangle\langle S_{ij}\rangle + \langle u_{ij}^{\mu}\rangle\langle u_{ij}^{\nu} S_{ij}\rangle\right),$$

$$H_{phon} = \sum_{ks}\omega_{ks}\left(b_{ks}^{+}b_{ks} + \frac{1}{2}\right), \qquad U \equiv \frac{1}{N}\sum_{ij}U(\vec{r}_{ij}),$$

$$H_{spin} = -\sum_{ij}\bar{I}_{ij}S_{ij} - \sum_{ij}\sum_{fg}F_{ijfg}\,S_{ij}S_{fg},$$

$$\bar{I}_{ij} = I(\vec{r}_{ij}) + \frac{1}{2}\sum_{\mu\nu}I_{ij}^{\mu\nu}\langle u_{ij}^{\mu}u_{ij}^{\nu}\rangle, \quad F_{ijfg} = \sum_{ks}\omega_{ks}(B_{ij}^{ks})^{*}B_{fg}^{ks}.$$

Спиновые переменные рассматривались в приближении Тер-Хаара

$$\langle S_{ij}S_{fg}\rangle = \langle S_{ij}\rangle\langle S_{fg}\rangle.$$

Константы взаимодействия брались из независимых экспериментов. Расчет показал, что появление намагниченности приводит к изменению интенсивности спектра f_M примерно на 1%, что лежит за пределами точности эксперимента. Этот вывод согласуется с опытами в геометрии источника, где измеряемая площадь спектра $S_{src} \sim f_M$.

В сечении поглощения

$$\sigma_{abs} = 2\pi(2I_1 + 1)/k_o^2\,(2I_o + 1)\,(1 + a_{con})$$

единственная величина, которая может зависеть от коллективных свойств системы, — это коэффициент внутренней конверсии $a_{con} = I_e/I_\gamma$, в котором I_e — интенсивность испускания конверсионных электронов, I_γ — средняя за период интенсивность излучения γ-квантов,

$$I_\gamma = \frac{\omega}{2\pi}\int_0^{2\pi/\omega} I(t)\,dt, \quad I(t) = \frac{4\omega^4}{3c^3}\sum_{ij} f_{ij}\langle \vec{m}_i^{+}(t)\,\vec{m}_j(t)\rangle,$$

здесь f_{ij} — формфактор системы, $\vec{m}_i(t)$ — оператор магнитного момента ядерного перехода M1. Разделяя в радиационном гамильтониане ядерные и фотонные переменные, имеем

$$H_{rad} = H_{nucl} + H_{phot}, \quad H_{phot} = \sum_{ks}\omega a_{ks}^{+}a_{ks},$$

$$H_{nucl} = \frac{\omega_0}{2}\sum_i[1 + \sigma_i^z(t)] - \frac{1}{2}\sum_i[\vec{m}_i^{+}(t)\vec{H}_i(t) + \vec{H}_i^{+}(t)\vec{m}_i(t)] -$$

$$-\frac{1}{2}\sum_{i\neq j}[\vec{m}_i^{+}(t)\vec{H}_{ij}(t) + \vec{H}_{ij}^{+}(t)\vec{m}_i(t)],$$

где магнитное поле, действующее на каждое мессбауэровское ядро,

$$\vec{H}_i(t) = \vec{H}_1 e^{-i\omega t} + \vec{H}_o,$$

состоит из переменного поля внешнего радиоактивного источника и сверхтонкого поля $\vec{H}_o$:

$$H_o \equiv |\vec{H}_o| = B_o S(T), \quad B_o \equiv -\frac{16\pi}{3}\mu_B n_e, \quad S(T) \equiv |\langle \vec{S}_i\rangle|,$$

$\vec{H}_{ij}$ — поле переизлучения /2/. Решая уравнения движения для средних от гейзенберговских операторов $\sigma_i^z(t)$ и $\vec{m}_i(t)$, находим интенсивность

$$I_\gamma = I_{inc} + I_{coh},$$

в которой когерентная составляющая индуцируется сверхтонким полем /3/. В результате коэффициент внутренней конверсии принимает вид

$$a_{con} = a_o/(1 + C_{coh}), \text{ где } a_o \equiv I_e/I_{inc}; \quad C_{coh} \equiv I_{coh}/I_{inc},$$

— коэффициент когерентности, равный

$$C_{coh} = N_n f\,\frac{3\Gamma^2 B_o^2}{2\omega^2 B^2}S^2(T), \quad f \equiv \frac{1}{N_n^2}\sum_{ij}f_{ij}, \quad B \equiv |\vec{H}_1|,$$

здесь N_n — число мессбауэровских ядер, Γ — естественная ширина. Делая оценки для характерных условий мессбауэровского эксперимента, когда $\Gamma \sim 10^{-8}$ эВ, $\omega \sim 10^4$ эВ, $B \sim 10^{-4}$ Э, $B_o \sim 10^5$ Э, $\lambda \sim 10^{-8}$ см, толщина образца $L \sim 10^{-3}$ см, плотность мессбауэровских ядер $\rho_n \sim$

В ряде переходных металлов и в некоторых их соединениях, например Ni, NiO, MnO, $Co_{1-x}Pd_x$, Mn_2Sn, $FeSn_2$, $Y_3Fe_5O_{12}$, $Tb_3Fe_5O_{12}$, ниже температуры перехода в магнитное состояние вместе с появлением намагниченности наблюдалось аномальное увеличение площади под мессбауровским спектром, составляющее $20 \div 50\%$ от площади спектра при парамагнитном состоянии металла. Обзор соответствующих экспериментов можно найти в книге[1]. Увеличение площади спектра связывалось со значительным изменением фононных характеристик при возникновении магнитного порядка, в частности, с сильным увеличением температуры Дебая и соответствующим уменьшением среднего квадратичного отклонения. Однако такая интерпретация противоречит другим экспериментам, в которых фононные характеристики измеряются непосредственно — с помощью рассеяния нейтронов, измерения скорости звука, исследования упругих и тепловых величин. Во всех этих экспериментах при переходе из парамагнитного в магнитное состояние никаких аномалий решеточных свойств не наблюдается. Не было обнаружено никаких магнитных аномалий и при иной постановке самого мессбауэровского эксперимента, в так называемой геометрии источника, когда внутрь исследуемого вещества внедрялся радиоактивный источник, а поглощающие мессбауэровские ядра находились вне вещества. Увеличение площади спектра наблюдалось только при экспериментах в геометрии поглотителя, когда мессбауэро кие ядра содержались в исследуемом веществе.

Для выяснения причины этого противоречия был проведен расчет величин, входящих в площадь спектра в геометрии поглотителя:

$$S_{abs} \sim \sigma_{abs} f_M,$$

здесь σ_{abs} — сечение поглощения мессбауэровского ядра, интенсивность мессбауэровского спектра

$$f_M = \exp(-2W),$$

где фактор

$$2W = \frac{k_0^2}{6mN} \sum_{ks} \frac{1}{\omega_{ks}} < (b_{ks} + b^+_{-ks})(b_{-ks} + b^+_{ks}) >;$$

все обозначения достаточно стандартны, поэтому для краткости не объясняются. Полный гамильтониан системы состоит из двух слагаемых:

$$H = H_{lat} + H_{rad},$$

первое содержит решеточные переменные, фононы и спины, второе — внутренние степени свободы излучающих ядер и фотоны. Решеточный гамильтониан имеет обычный вид:

$$H_{lat} = \sum_i \frac{\vec{p}_i^{\,2}}{2m} + \frac{1}{2} \sum_{ij} U(\vec{R}_i - \vec{R}_j) - \sum_{ij} I(\vec{R}_i - \vec{R}_j) \vec{S}_i \vec{S}_j .$$

Взаимодействия в нем разлагаются по отклонениям и вводятся фононы. В дальнейшем используются сокращенные обозначения:

$$S_{ij} \equiv \vec{S}_i \vec{S}_j, \qquad \vec{r}_{ij} \equiv \vec{r}_i - \vec{r}_j,$$

$\vec{r}_i$ — координата узла,

$$\vec{R}_i - \vec{R}_j = \vec{r}_{ij} + \vec{u}_{ij} .$$

Для вычисления фактора W проделывалась следующая процедура. Применялось операторное преобразование

$$b_{ks} b_{k's'} S_{ij} = A_1 + A_2 b_{ks} b_{k's'} + A_3 S_{ij} + A_4 b_{ks} S_{ij} + A_5 b_{k's'} S_{ij} ,$$

и аналогичное для конструкции $b^+_{ks} b_{k's'} S_{ij}$. Коэффициенты $A_1, A_2, \ldots A_{10}$ находились из вариационного принципа Гиббса — Боголюбова. Далее привлекалось каноническое преобразование Вакса — Ларкина, разделяющее фононные и спиновые переменные:

$$b_{ks} \to b_{ks} + \sum_{ij} B^{ks}_{ij} S_{ij}, \quad B^{ks}_{ij} = \sum_\mu \bar{I}^\mu_{ij} \frac{e^\mu_{ks} e^{i\vec{k}\vec{r}_{ij}}}{\sqrt{2mN\omega^3_{ks}}},$$

$$\bar{I}^\mu_{ij} \equiv I^\mu_{ij} + \sum_{ks} \sum_\nu I^{\mu\nu}_{ij} \frac{e^\nu_{ks} e^{i\vec{k}\vec{r}_{ij}}}{\sqrt{2mN\omega_{ks}}} (< b_{ks} > + < b^+_{-ks} >),$$

$$I^\mu_{ij} \equiv \partial I(\vec{r}_{ij}) / \partial r^\mu_{ij}, \qquad I^{\mu\nu}_{ij} \equiv \partial^2 I(\vec{r}_{ij}) / \partial r^\mu_{ij} \partial r^\nu_{ij} .$$

Фононный спектр определяется уравнением

$\sim 10^{21}$ см$^{-3}$, $N_n \sim \rho_n \ell^2_{ext} L \sim 10^{16}$, длина экстинкции $\ell_{ext} \sim 10^{-1}$ см, $\ell \sim \lambda^2/L^2 \sim 10^{-10}$, получаем $C_{coh} \sim 1$. Следовательно, появление когерентного излучения, индуцированного сверхтонким полем, уменьшает α_{con}, что приводит к увеличению сечения поглощения σ_{abs}, вследствие чего увеличивается площадь спектра S_{abs}, как это и наблюдалось в экспериментах.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Николаев В.И., Русаков В.С. – Мессбауэровские исследования ферритов. М.: изд-во МГУ, 1985.*
2. *Емельянов В.И., Юкалов В.И. – Опт. спектр., 1986, 60, с.634.*
3. *Юкалов В.И. ОИЯИ, Р17-88-14, Дубна, 1988.*

Рукопись поступила в издательский отдел
22 апреля 1988 года.

Юкалов В.И. Р17-88-269

Магнитные аномалии при эффекте Мёссбауэра

Предложено объяснение аномального увеличения площади мессбауэровского спектра ниже температуры перехода из парамагнитного в магнитное состояние. Показано, что это увеличение не связано с изменением фононных характеристик ниже температуры перехода, как это считалось ранее. Выяснено, что причиной таких магнитных аномалий является возникновение индуцированного сверхтонким полем когерентного гамма-излучения, в результате чего уменьшается коэффициент внутренней конверсии, увеличивается сечение поглощения, а также площадь мессбауэровского спектра.

Работа выполнена в Лаборатории теоретической физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1988

Перевод автора

Yukalov V.I. P17-88-269

Magnetic Anomalies under Mössbauer Effect

An explanation is suggested for the anomalous increase of the Mössbauer-spectrum area below a transition temperature from the paramagnetic state. It is shown that this increase is not connected with a change in phonon characterictic below the transition temperature, as has been thought earlier. It is cleared up that the cause of such magnetic anomalies is the appearance of a hyperfine-field-induced coherent gamma radiation, resulting in the dimmishing of the internal conversion coefficient and, as a consequence, in the increase of the absorption section and the Mössbauer-spectrum area.

The investigation has been performed at the Laboratory of Theoretical Physics, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1988