

УДК 537.635

ФОРМИРОВАНИЕ СИГНАЛОВ ДВУХИМПУЛЬСНОГО ЯДЕРНОГО СПИНОВОГО ЭХО В ПЛЕНКАХ ФЕРРИТА ГРАНАТА ИТТРИЯ

Бержанский В. Н., Полулях С. Н., Тупицын Ю. В.

ВВЕДЕНИЕ

При анализе процессов формирования импульсных откликов ЯМР в магнитоупорядоченных веществах, как правило, принято рассматривать неоднородное возбуждение спектральной линии, когда амплитуда переменного магнитного поля во время действия возбуждающих импульсов ν_1 существенно меньше, чем ширина спектральной линии σ_ν . Известно, что в этом случае длительность импульсного отклика не может превышать длительность возбуждающего импульса [1]. Существенное влияние на форму импульсного отклика спиновой системы оказывает площадь возбуждающего импульса $\alpha = \omega_1 t_p$, где t_p – длительность импульса, $\omega_1 = 2\pi\nu_1$. При малых площадях возбуждающих импульсов $\alpha < \pi$ сигнал эхо имеет колоколообразную форму. Увеличение площади импульса $\alpha > \pi$ приводит к тому, что как в сигнале свободной индукции, так и в сигнале эхо появляются осцилляции, число которых растет с ростом площади импульса [2, 3]. В магнитоупорядоченных веществах амплитуда переменного магнитного поля, непосредственно действующего на ядерные спины, в η раз больше амплитуды поля, приложенного к образцу (η – коэффициент усиления ЯМР) [4]. При анализе импульсных откликов ЯМР от внутриграничных ядер, начиная с работы [5], принято учитывать неоднородность коэффициента усиления ЯМР η по контуру неоднородно уширенной спектральной линии. При этом неоднородность коэффициента усиления приводит к дополнительным искажениям формы сигналов эхо и спада свободной индукции [4, 5].

Однородное возбуждение спектральной линии имеет место при $\nu_1 > \sigma_\nu$ и, как правило, реализуется в немагнитных материалах [6, 7]. В этом случае длительность импульсного отклика определяется обратной шириной спектральной линии и, в специальных случаях (например, эхо Хана или спад свободной индукции после $\pi/2$ импульса), форма импульсного отклика ЯМР связана с формой спектральной линии преобразованием Фурье [6, 7]. Заметим, что при относительно небольших площадях возбуждающих импульсов $\alpha < 10\pi$ длительность импульса $t_p < 5\nu_1^{-1}$ мала по сравнению с σ_ν^{-1} и, следовательно, длительность импульсного отклика больше, чем длительность возбуждающего импульса.

* Выраженная в единицах частоты посредством гиромагнитного отношения

ЭКСПЕРИМЕНТ

Для анализа условий формирования импульсных откликов ЯМР в пленках железо-иттриевого феррит-граната исследовалась зависимость формы сигнала двухимпульсного эхо от амплитуды и длительности возбуждающих импульсов. В качестве датчика использовалась катушка из медного провода, намотанная равномерным шагом на образец так, чтобы обеспечить максимальное заполнение катушки образцом. При этом максимально возможное переменное магнитное поле в образце ν_1^{\max} соответствовало мощности радиочастотного импульса $P \approx 40$ Вт.

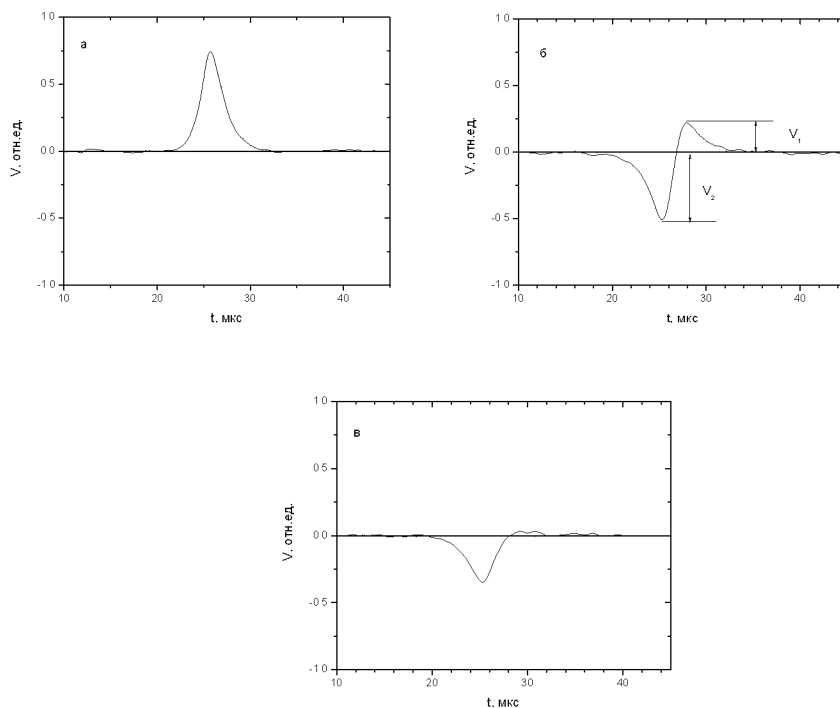


Рис. 1 Сигналы двухимпульсного эхо. Сплошные линии – экспериментально зарегистрированные сигналы при $\nu_1 = 0.52\nu_{1\max}$ и длительности каждого возбуждающего импульса 0.4 мкс (а), 1.0 мкс (б) и 1.4 мкс (в). Пунктир – расчет для гауссовой линии с дисперсией $\sigma = 0.08$ МГц при неоднородности амплитуда РЧ поля в возбуждающих импульсах $\nu_1 = 0.5$ МГц $\pm 12\%$ и углах поворота намагниченности во время действия каждого из импульсов $2\pi\nu_1 t_p = 0.42\pi$ (а), 1.05π (б) и 1.6π (в)

С целью уменьшения числа варьируемых параметров длительность второго возбуждающего импульса выбиралась равной длительности первого. Использование когерентного спектрометра позволяло поддерживать одинаковой фазу радиочастотных колебаний в каждом из импульсов. Фаза опорного напряжения синхронного детектора выбиралась из условия максимума амплитуды эхо при длительности каждого возбуждающего импульса $t_p = 0.4$ мкс и амплитуде импульса, обеспечивающей максимум амплитуды эхо.

Эксперименты проводились при комнатной температуре на образцах пленок $Y_3Fe_5O_{12}$, обогащенных магнитным изотопом ^{57}Fe (спин $I = 1/2$). Сигналы эхо возбуждались на частотах, соответствующих резонансу ядер ^{57}Fe как тетраэдрических, так и октаэдрических ионов Fe^{3+} . В качестве примера, на рис.1 сплошными линиями показаны типичные сигналы спинового эхо ядер ^{57}Fe тетраэдрических ионов Fe^{3+} при амплитуде возбуждающих импульсов $v_1 = 0.52 \cdot v_1^{max}$ и задержке между импульсами $\tau = 25$ мкс. Время t отсчитывалось с момента окончания действия второго импульса. Каждый из сигналов нормирован на максимальную амплитуду эхо, реализующуюся при выбранной амплитуде возбуждающих импульсов.

При малых длительностях возбуждающих импульсов наблюдаются сигналы эхо, форма которых близка к колокообразной. При малых амплитудах РЧ поля сигнал эхо достаточно хорошо аппроксимируется одним гауссианом (рис.2а).

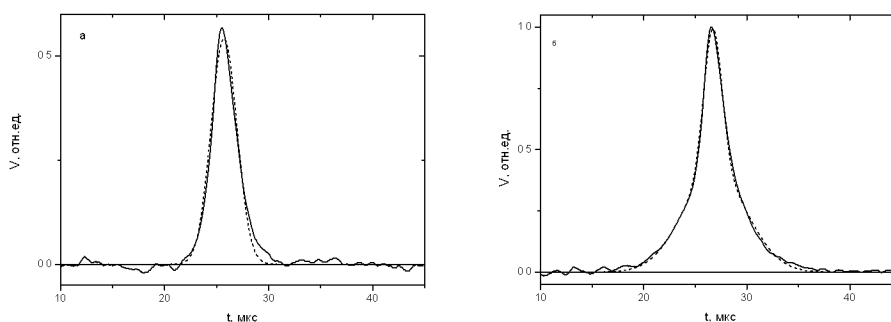


Рис.2 Сигналы двухимпульсного эхо. Сплошная линия – эксперимент при $t_p = 0.4$ мкс и $v_1 = 0.42 v_1^{max}$ (а) и $v_1 = 0.85 v_1^{max}$ (б). Пунктирная линия – гауссиан с $\sigma_t = 2.5$ мкс (а) и сумма двух гауссианов с $\sigma_t = 1.76$ мкс и $\sigma_t = 6.2$ мкс (б).

Увеличение v_1 приводит к формированию двухкомпонентной структуры так, что сигнал эхо может быть представлен суммой двух гауссианов с разными дисперсиями σ_t (рис.2б). При этом для всех использованных значений v_1 ширина сигнала эхо превышает

длительность возбуждающих импульсов, что свидетельствует об однородном возбуждении спектральной линии ($\nu_1 > \sigma_\nu$).

Увеличение длительности импульсов вначале приводит к росту амплитуды эхо при сохранении формы. Дальнейший рост длительностей импульсов приводит как к изменению амплитуды, так и формы сигнала эхо (рис.1б). Однако, при всех использованных амплитудах и длительностях импульсов наблюдались сигналы эхо, подобные сигналам рис.1. А именно, наблюдались либо сигналы с формой, близкой к колоколообразной, либо сигналы «изогнутой» формы так, что вначале формируется минимум амплитуды в отрицательных значениях, а затем – максимум в положительных.

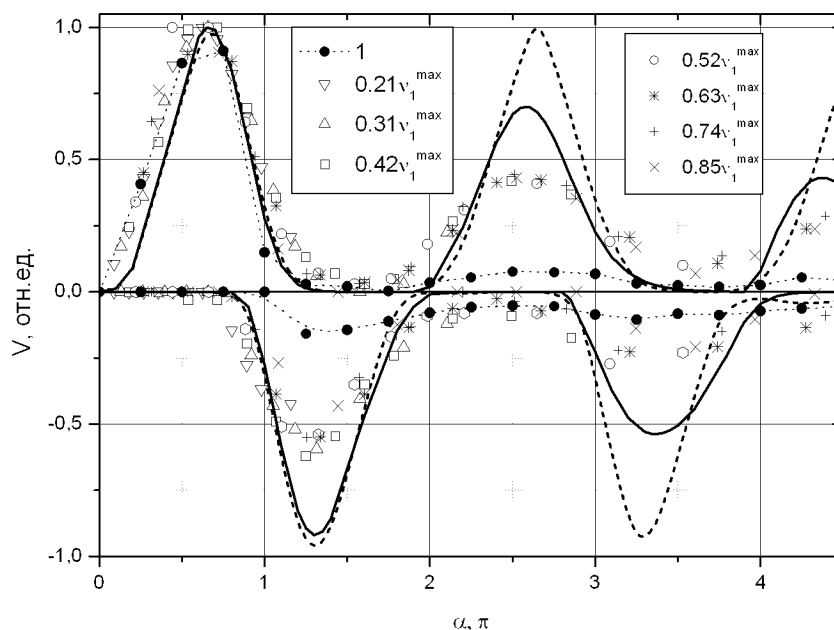


Рис.3 Зависимость амплитуды сигнала эхо от площади импульса. Пунктирная линия – расчет для гауссиана с $\sigma_\nu = 0.08$ МГц и прямоугольный возбуждающий импульс амплитудой $\nu_1 = 0.5$ МГц. Сплошная линия – расчет для $\sigma_\nu = 0.08$ МГц и $\nu_1 = 0.5 \pm 12\%$ МГц. Цифрой 1 обозначены данные, полученные в сильно неоднородном радиочастотном поле

Для амплитуды таких сигналов можно ограничиться двумя параметрами – максимальным (V_1) и минимальным (V_2) значениями амплитуды (рис.1б). Для сигнала

колокообразной формы одна из этих амплитуд (например, V_2 для сигнала с положительной амплитудой) равна нулю.

Экспериментальные точки на рис.3 представляют зависимость амплитуды сигнала эхо ядер ^{57}Fe тетраэдрических ионов Fe^{3+} от площади импульса при различных амплитудах переменного магнитного поля. Для ядер ^{57}Fe октаэдрических ионов Fe^{3+} зависимость подобна приведенной на рис.3. Амплитуда каждого из сигналов на рис.3 нормировалась на максимум амплитуды эхо, реализующегося при выбранной амплитуде возбуждающих импульсов.

Заметим, что прямая оценка амплитуды РЧ поля ν_1 , непосредственно действующего на ядерные спины, представляется достаточно сложной как по радиотехническим причинам (например, амплитуда РЧ поля в катушке с магнитным сердечником), так и вследствие неизвестного заранее коэффициента усиления ЯМР η . Поэтому, при построении экспериментальных зависимостей на рис.3 для всех амплитуд РЧ поля использовался один и тот же масштабирующий множитель k , который впоследствии подбирался так, чтобы обеспечить согласие с теорией. Как следует из данных рис.2, параметром, определяющим амплитуду и форму сигнала эхо является площадь возбуждающего импульса α .

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭКСПЕРИМЕНТА

Рассмотрим простейший случай спиновой системы, описываемой классическим уравнением движения намагниченности \vec{m} [6]:

$$d\vec{m}/dt = \gamma[\vec{m}\vec{B}], \quad (1)$$

где γ – гиромагнитное отношение, B – магнитное поле. Такое допущение является корректным для системы невзаимодействующих частиц со спином $I = 1/2$ [6, 7]. Для простоты будем полагать, что неоднородное уширение спектральной линии описывается функцией Гаусса с дисперсией $\sigma_\nu = 0.08$ МГц. Пунктирная линия на рис.2 показывает расчетную зависимость амплитуды эхо от длительности возбуждающих импульсов при амплитуде радиочастотного поля $\nu_1 = 0.5$ МГц. Как следует из данных рис.2, расхождения между расчетной и экспериментально наблюдаемой зависимостями нарастают по мере увеличения площади импульса. Наблюдаемые расхождения нельзя приписать амплитудно-фазовым искажениям возбуждающих импульсов, так как, в этом случае, расхождения теории и эксперимента должны зависеть только от длительности, а не от площади импульса.

Для объяснения наблюдаемых расхождений было предположено, что радиочастотное поле неоднородно по образцу. Рассмотрена простейшая ситуация, когда неоднородность радиочастотного поля описывается прямоугольной функцией так, что при приложенном поле ν_1 можно обнаружить частицы, для которых радиочастотное поле равновероятно принимает значения из диапазона $(1 \pm \delta)\nu_1$. Пунктирная линия на рис.3 представляет расчетную зависимость амплитуды сигнала эхо от площади возбуждающего импульса

при $\delta = 0.12$. Для проведения расчетов использовались 7 равноотстоящих значений ν_1 из указанного диапазона.

Как следует из данных рис.3, учет неоднородности переменного магнитного поля по образцу качественно отражает приближение расчета к эксперименту. А именно, увеличение площади импульсов приводит к уменьшению амплитуды в максимумах. Выбором коэффициента k удастся обеспечить согласование экспериментальных и расчетных значений углов поворота α , обеспечивающих соответствующие положения максимумов V_{\max} на зависимости $\Gamma = \Gamma(\alpha)$. Интересно заметить, что спад экспериментальной зависимости $|\Gamma| = f(\alpha)$ аппроксимируется экспоненциальной зависимостью $|\Gamma_{\max}| \sim \exp(-\alpha)$.

Специально поставленный эксперимент по искусственному увеличению неоднородности магнитного поля подтверждает уменьшение Γ_{\max} с ростом α (зависимость 1 на рис.3). В этом случае проволочная катушка наматывалась по середине образца так, что непосредственно в катушке находилась примерно треть образца.

Для более точного совпадения расчетной и экспериментальной зависимостей требуется более точный учет функции формы линии а также функции, описывающей неоднородность переменного магнитного поля. Однако, заметим, что при использовании несимметричной функции для описания неоднородности переменного магнитного поля, расхождение расчета с эксперимента становятся более существенными, так как при этом изменяются значения площадей импульсов, обеспечивающих максимум амплитуды эхо.

Неоднородность переменного магнитного поля пол образцу может быть обусловлена двумя факторами. Во-первых, неоднородностью переменного магнитного поля в возбуждающей катушке. Однако, большая магнитная восприимчивость ЖИГ должна подавлять эту неоднородность. Второй фактор – неоднородность коэффициента η , обусловленная неоднородностью магнитной восприимчивости по образцу. Принимая во внимание симметричный характер неоднородности переменного магнитного поля, можно полагать, именно неоднородное уширение коэффициента усиления ЯМР η ответственно за экспериментально наблюдаемые особенности формирования сигналов эхо.

Кроме того, как следует из рис.2, спектральная линия ЯМР в исследованных образцах является двухкомпонентной. Компонента ЯМР спектра с меньшей дисперсией σ_ν (широкое эхо) обладает меньшим коэффициентом усиления η , что следует из возможности ее выделения в колоколообразном эхо лишь при больших ν_1 . Дисперсия компоненты σ_ν с широким спектром (узкое эхо) растет с ростом ν_1 , что отражает неоднородность коэффициента усиления ЯМР η по контуру этой линии. Наличие двух спектральных компонент: более узкой с меньшим коэффициентом усиления ЯМР и более широкой с большим коэффициентом усиления ЯМР, как правило, в магнетиках ассоциируется с сигналом от ядер в доменах и доменных границах, соответственно [4]. В частности, в работе [8] показано, что коэффициент усиления ЯМР для внутрigrаничных ядер в ЖИГ действительно может зависеть от частоты.

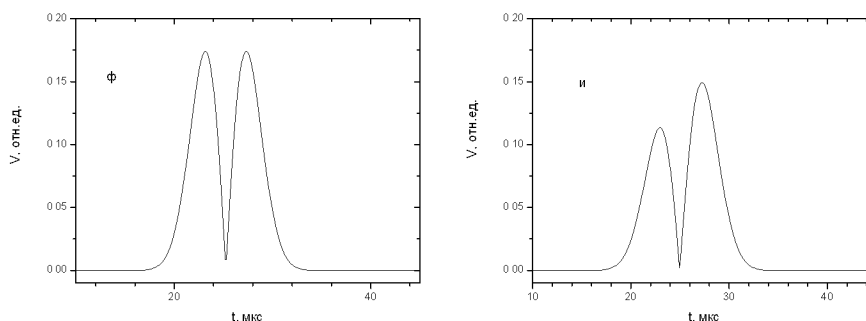


Рис. 4. Расчетные сигналы эхо (модуль поперечной намагниченности) при $\sigma_v = 0.08$ МГц, $\nu_1 = 0.5$ МГц. (а) $\alpha_1 = \alpha_2 = \pi$. (б) $\alpha_1 = \pi$, $\alpha_2 = 1.3\pi$

Другим источником двухкомпонентного эхо может служить слоистая структура эпитаксиальной пленки, которая иногда возникает в результате отличия свойств приповерхностных частей пленки. Таким образом, вопрос о природе двухкомпонентного эхо требует более детального исследования.

Интересно заметить, что при традиционном использовании некогерентного возбуждения и регистрации сигналов эхо экспериментально наблюдаемый сигнал определяется модулем поперечной намагниченности $V \sim \sqrt{m_x^2 + m_y^2}$. В этом случае сигнал, подобный приведенному на рис.1б, будет подобен «двугорбому» эхо Мимса [2]. Расчетная зависимость, иллюстрирующая «двугорбое» эхо при однородном возбуждении спектральной линии, приведена на рис.4. Отличие «двугорбого» эхо при однородном возбуждении от «двугорбого» эхо Мимса состоит в том, что длительность сигнала определяется обратной шириной спектральной линии, а не длительностью возбуждающих импульсов и увеличение площадей импульсов не приводит к увеличению числа максимумов в сигнале эхо. Необходимое условие появления «двугорбого» эхо при $\nu_1 > \sigma$ определяется площадью первого возбуждающего импульса: $\alpha_1 \geq 0.8\pi$. При меньших площадях первого импульса эхо имеет колокообразную форму независимо от площади второго импульса.

ВЫВОДЫ

Исследовано поведение спинового эхо ядер ^{57}Fe при их когерентном возбуждении в пленках феррита-граната иттрия при больших углах поворота спинов до 5π . Обнаружено, что амплитуда эхо спадает с ростом угла поворота. Показано, что в качестве причины такого поведения может выступать неоднородность внутреннего радиочастотного поля.

Неоднородность магнитного поля, связанная с системой возбуждения спиновой системы может быть частично компенсирована высокой магнитной восприимчивостью

при исследовании магнетиков. Другим источником неоднородности может выступать коэффициент усиления ЯМР. В частных случаях сигналов эхо от ядер внутриграничных ионов, занимающих низкосимметричные позиции кристаллической решетки, оказывается возможным найти частотную зависимость коэффициента η [4, 5, 8]. В отличие от работы [8], в настоящей работе использовались образцы нелегированного ЖИГ, в которых частота ЯМР ядер ^{57}Fe тетраэдрических ионов Fe^{3+} изотропна и спектр ЯМР представляет собой одиночную линию. В этом случае неоднородность коэффициента η и неоднородное уширение спектральной линии рассматриваются как независимые величины и для неоднородности коэффициента η было использовано симметричное распределение.

Список литературы

1. Schenzle, N.C. Wong, R.G. Brewer. Theorem on coherent transients. Phys.Rev.A. 22, 1980, 635 – 637
2. W.E. Mims. Electron Echo Methods in Spin Resonance Spectroscopy. Rev. Sci. Instr. 36(10), 1965, 1472–1479
3. В.С. Кузьмин. Журнал Прикладной Спектроскопии. 44, 1986, 474 – 480
4. М.И. Куркин, Е.А. Туров. ЯМР в магнитоупорядоченных веществах и его применения. «Наука», М., (1990), 551 С
5. M. Stearns. Internal-Field Variations with Temperature for the Two Sublattices of Ordered Fe₃Al and Fe₃Si. Phys. Rev. 168, 588–592 (1968)
6. А. Абрагам. Ядерный магнетизм. ИИЛ, Москва (1963)
7. Р.Эрнст, Дж. Боденхаузен, А. Вокаун. ЯМР в одном и двух измерениях. М., МИР, 1990, 711 С.
8. С.В. Серегин, Р.А. Дорошенко, В.А. Тимофеева, Р.С. Фахретдинова. Фотоиндуцированное изменение ЯМР Fe-57 в Y₃Fe₅O₁₂. Письма в ЖЭТФ. 50, 1989, 130 – 132

Поступила в редакцию 18.06.2005 г.