Письма в ЖЭТФ, том 92, вып. 1, с. 27 – 33 © 2010 г. 10 июля

О форме гамма-резонансных спектров медленно релаксирующих наночастиц в магнитном поле

М. А. Чуев[1]), *В. М. Черепанов**, *М. А. Поликарпов**

Физико-технологический институт РАН, 117218 Москва, Россия

**Российский научный центр "Курчатовский институт", 123182 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 6 мая 2010 г.

После переработки 21 мая 2010 г.

Предсказана, обнаружена и аналитически описана нестандартная форма гамма-резонансных спектров наночастиц в виде перевернутого пятиступенчатого пьедестала, соответствующая пределу высоких температур и медленной релаксации однородной намагниченности однодоменных частиц с аксиальной магнитной анизотропией. Для описания мессбауэровских спектров ансамбля хаотически ориентированных наночастиц в магнитном поле разработана континуальная модель магнитной динамики в пределе медленной релаксации, которая адекватно описывает поляризационные эффекты, наблюдаемые в экспериментальных спектрах поглощения. Обнаруженные особенности существенно расширяют методические возможности мессбауэровской спектроскопии для диагностики магнитных наноматериалов.

1. Введение. Одним из наиболее информативных методов исследования структурных, магнитных и термодинамических свойств материалов, содержащих магнитные частицы или кластеры нанометрового размера, является гамма-резонансная (мессбауэровская) спектроскопия, при этом основой многолетних методических достижений является широкое разнообразие форм спектров поглощения, которые отражают особенности магнитной динамики этих материалов в зависимости от внешних параметров [1]. Наибольшее распространение получила методика измерения мессбауэровских спектров в зависимости от температуры, поскольку основные особенности эволюции магнитной сверхтонкой структуры (СТС) спектров наночастиц с температурой давно и хорошо известны как следствие простейшей двухуровневой модели релаксации однодоменной частицы с аксиальной магнитной анизотропией [2]. При достаточно низких температурах, когда магнитные моменты наночастиц "заморожены" в локальных минимумах энергии магнитной анизотропии, спектры демонстрируют хорошо разрешенную СТС (магнитный секстет линий для ядер ^{57}Fe, соответствующий зеемановскому расщеплению энергетических уровней ядра в сверхтонком магнитном поле $\mathbf{H}_{hf}$ (см. рис.1a). С повышением температуры существенную роль начинают играть переходы между локальными состояниями, а когда скорость этих переходов становится сравнимой с временем жизни ядра в возбужденном состоянии, величина и направление $\mathbf{H}_{hf}$ следуют изменениям во времени магнитного момента частицы и меняются во времени случайным образом, что приводит к размытию магнитной СТС спектров (рис.1b). С дальнейшим повышением температуры, когда скорость релаксационных переходов становится больше ларморовской частоты прецессии спина ядра в сверхтонком поле, ядро не успевает следить за быстрыми

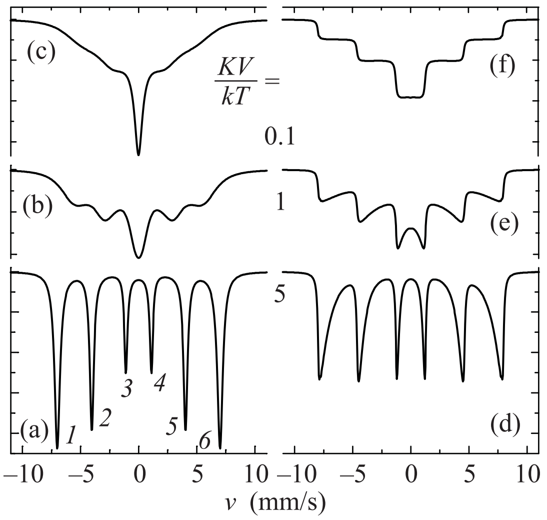

Рис.1. Спектры поглощения ядер ^{57}Fe в ансамбле однодоменных частиц ($H_{hf}^{(0)} = 500$ кЭ), рассчитанные в рамках многоуровневой модели релаксации [3, 4] при $D = 1$ мм/с ≈ 73 мкс$^{-1}$ (слева) и в пределе медленной диффузии при $D \ll \Gamma_0$ (справа) для разных значений KV/kT, приведенных в центре. Кривая (f) соответствует высокотемпературному пределу медленно релаксирующих наночастиц. Пронумерованы линии классического магнитного секстета (a)

[1])e-mail: chuev@ftian.ru

изменениями направления магнитного момента частицы, и происходит коллапс магнитной СТС в одиночную линию (рис.1c).

Наиболее адекватной с физической точки зрения моделью для описания такой трансформации мессбауэровских спектров является многоуровневая релаксационная (МУР) модель [3, 4], основанная на квантово-механическом описании однородно намагниченной частицы с плотностью энергии

$$E = -K\cos^2\theta = -KS_z^2/S^2 \tag{1}$$

(K – константа аксиальной магнитной анизотропии, θ – угол между направлением однородной намагниченности $\mathbf{M}$ и осью легчайшего намагничивания частицы), с намагниченностью M_0 или полным спином S и $(2S+1)$ (стохастическими) состояниями проекции S_z, переходы между которыми обусловлены поперечными компонентами случайного поля. Фактически эта модель является квантовым аналогом общей теории релаксации однородной намагниченности статистического ансамбля однодоменных частиц в магнитном поле [5], в которой стохастическая переориентация вектора M описывается уравнением диффузии с релаксационным оператором [6]

$$P = -D\left[\Delta - \frac{V}{kT}\nabla(\nabla E(\theta,\varphi))\right] - \\ -\frac{\gamma}{M_0}\left(\frac{\mathbf{M}}{M_0}\times\nabla E(\theta,\varphi)\right), \tag{2}$$

где D – коэффициент диффузии, V – объем частицы, φ – азимутальный угол, γ – гиромагнитное отношение.

С макроскопической точки зрения модель МУР описывает стохастические переходы между орбитами прецессии однородной намагниченности (с постоянной энергией $E(\theta)$) в эффективном поле:

$$\mathbf{H}_{\text{eff}}(\theta) = H_C\cos\theta\mathbf{n}_z, \tag{3}$$

где $\mathbf{n}_z$ – единичный вектор вдоль оси анизотропии, а параметр

$$H_C = 2K/M_0 \tag{4}$$

является критическим полем полного перемагничивания частиц с произвольной ориентацией [7] и определяет характерную частоту прецессии в локальных минимумах энергии (1):

$$\Omega_0 = -\gamma H_C. \tag{5}$$

Отметим два существенных обстоятельства, которые ограничивают область физических параметров, в которой эта модель применима. Во-первых, неявным предположением исходной модели МУР [3] является существенное превышение характерной частоты прецессии Ω_0 над ларморовскими частотами прецессии ядерного спина в сверхтонком магнитном поле:

$$\omega_{g,e} = -g_{g,e}\mu_N H_{hf}/\hbar, \tag{6}$$

μ_N – ядерный магнетон, g_g и g_e – ядерные g-факторы для основного и возбужденного состояний ядра. Учет неизбежного уменьшения частоты прецессии вектора однородной намагниченности, отклоненного на угол θ относительно "легкой" оси, в поле магнитной анизотропии (3)

$$\Omega(\theta) = \Omega_0\cos\theta \tag{7}$$

приводит к качественной трансформации спектров поглощения [4], поэтому модель МУР [3] справедлива лишь при условии

$$|\Omega_0| \gg \omega_g, \omega_e. \tag{8}$$

Во-вторых, само предположение о наличии эффективного поля (3) справедливо лишь в том случае, когда оно успевает вырабатываться на фоне непрерывного релаксационного процесса, заданного скоростью диффузии D, то есть когда

$$|\Omega_0| \gg D. \tag{9}$$

В силу своего одномерного характера модель МУР довольно легко реализуется на персональном компьютере, поскольку расчет спектра поглощения сводится к решению системы линейных уравнений с числом операций порядка числа стохастических состояний $(2S+1)$ и выполняется за время, меньшее 1 с [3, 4]. Однако за прошедшие почти четверть века число работ, в которых эта "физическая" модель была использована для анализа экспериментальных спектров, можно пересчитать по пальцам [8 – 10]. Подавляющее большинство исследователей предпочитает использовать формально-математический подход, в котором ищется непрерывное распределение величины H_{hf} [11], причем основным преимуществом этого подхода является еще большая простота его компьютерной реализации, а основным недостатком – отсутствие реальной информации о физических параметрах исследуемой системы.

2. Предел медленной диффузии. Помимо более аккуратного (по сравнению с двухуровневой моделью релаксации [2]) описания стандартной эволюции формы спектров наночастиц с температурой (рис.1, слева), модель МУР позволяет описать качественно другие формы спектров, в частности, часто наблюдаемые в эксперименте сильно асимметричные линии с резкими внешними фронтами и сильно размытыми к центру спектра внутренними фронтами (рис.1d, e). Такая форма спектров реализуется в режиме медленной релаксации [3, 4, 6], когда скорость диффузии существенно меньше скорости распада возбужденного состояния ядра, то есть когда

$$D \ll \Gamma_0, \tag{10}$$

где $\Gamma_0 \equiv \Gamma_0/\hbar$ – ширина уровня энергии возбужденного состояния ядра в частотных единицах. Фактически условию (10) удовлетворяют достаточно хорошо изолированные наночастицы, слабо взаимодействующие с окружением. В этом случае релаксация не оказывает существенного влияния на формирование СТС, а сама форма спектров определяется распределением Гиббса эффективного поля (3) по равновесной заселенности стохастических состояний [4, 6]:

$$W(\theta) \propto \sin\theta \exp[-E(\theta)V/kT], \tag{11}$$

где T – температура, k – константа Больцмана.

Как ни странно, но в предыдущих теоретических работах в пределе (10) выпал из рассмотрения классический предельный случай высоких температур

$$kT \gg KV. \tag{12}$$

Соответствующий спектр поглощения, рассчитанный в модели МУР, показан на рис.1f и демонстрирует весьма экзотическую форму магнитной СТС в виде перевернутого пятиступенчатого пьедестала. Помимо очевидного академического интереса, такая форма спектра требует отдельного рассмотрения еще и потому, что спектры такой формы ранее неоднократно и отчетливо наблюдались в экспериментах в виде парциальной компоненты СТС на фоне одиночной линии или квадрупольного дублета, соответствующих частицам в режиме быстрой релаксации (рис.1c) [8, 12, 13]. При этом качественное объяснение такой суперпозиции различных вкладов в спектры проводилось исключительно в терминах довольно широких непрерывных распределений $P(H_{hf})$ [11], предполагая, прежде всего, наличие разброса частиц по размерам. Основной целью настоящей работы как раз и является анализ формы гамма-резонансных спектров наночастиц в предельном случае (10) и (12).

Еще одним побудительным мотивом для проведения такого исследования является чрезвычайно информативная, но крайне редко используемая методика измерения мессбауэровских спектров наночастиц в слабом (по сравнению с H_{hf}) магнитном поле. В экспериментах наблюдается кардинальная трансформация формы спектров наночастиц с изменением напряженности внешнего поля порядка или меньше 1 кЭ [10, 13, 14], однако до последнего времени фактически отсутствовал теоретический базис для анализа спектров такого рода, что не позволяло извлекать информацию о физических параметрах исследуемого материала. Недавно был предложен общий путь решения этой задачи на основе описания магнитной динамики ансамбля наночастиц в рамках диффузионного уравнения с релаксационным оператором (2), в котором в качестве стохастических состояний каждой частицы рассматриваются прецессионные орбиты вектора $\mathbf{M}$, а каждое состояние характеризуется средним значением намагниченности вдоль каждой траектории [1, 15, 16]. Однако задача расчета мессбауэровских спектров в рамках этого общего подхода еще не решена, поскольку основные проблемы анализа связаны с оптимизацией вычислительной процедуры, прежде всего для расчета лиувиллевских операторов сверхтонкого взаимодействия в условиях меняющегося как по величине, так и по направлению сверхтонкого поля [1, 16].

Единственным, реализованным к настоящему времени упрощенным вариантом такого подхода для анализа спектров является трехуровневая модель релаксации [16], в которой стохастическими состояниями являются три характерные области устойчивого вращения вектора $\mathbf{M}$ вокруг полюсов, соответствующих локальным минимумам и абсолютному максимуму энергии частицы в слабом ($H < H_C$) магнитном поле $\mathbf{H}$:

$$E = -K\cos^2\theta - \mathbf{HM}. \tag{13}$$

Физическим основанием для такого упрощения является специальный вид релаксационного оператора (2), который позволяет свести задачу к чисто квантовомеханической, а уравнение диффузии – к двумерному уравнению Шредингера на поверхности единичной сферы с эффективным потенциалом, который даже в отсутствие внешнего поля имеет двугорбый профиль с тремя областями финитного движения при $KV > kT$ [6]. Отметим, что предположение о диффузионном усреднении вектора однородной намагниченности в пределах каждого из трех стохастических состояний справедливо лишь в том случае, когда

$$\Gamma_0 \ll D \ll |\Omega_0|, \tag{14}$$

что, в свою очередь, накладывает дополнительное ограничение на область физических параметров, в которой трехуровневая модель релаксации применима. Эта модель позволяет не только проводить численный анализ экспериментальных спектров ансамбля однодоменных частиц в магнитном поле, но и делать качественные выводы о реализации той или иной формы спектров в каждом отдельном случае [10].

Как мы увидим ниже, многоуровневая модель магнитной динамики [1, 15, 16] в предельном случае (10) и (12) также сводится к довольно простому и замкнутому формализму для расчета мессбауэровских спектров наночастиц в магнитном поле, что естественно расширяет теоретический базис и область физических параметров для анализа этих спектров.

Прежде всего, мы решили приготовить систему изолированных магнитных наночастиц, слабо взаимодействующих с окружением и удовлетворяющих условию (10). С этой целью мы выбрали коммерчески-доступные магнитные наночастицы оксида железа в полимерной матрице со средним размером порядка 10 нм, поставляемые в виде феррожидкости. Для мессбауэровских измерений феррожидкость высушивалась и полученный порошок растворялся в спиртовом растворе с клеем БФ-4, осаждался на поверхность алюминиевой фольги и снова высушивался. Спектры ядер ^{57}Fe в приготовленном образце были измерены при комнатной температуре на стандартном спектрометре в режиме постоянного ускорения и геометрии на пропускание с использованием радиоактивного источника ^{57}Co/(Rh). Измерения спектров в магнитном поле с напряженностью $H = 200$ и 400 Э проводились с использованием пары ферритовых колец, расположенных на расстояниях, отвечающих условию Гельмгольца однородного поля, по обе стороны образца с ориентацией оси вдоль ($H_{\|}$) и перпендикулярно ($H_{\perp}$) направлению пучка гамма-квантов. Измерения спектра в поперечном магнитном поле с напряженностью $H_{\perp} = 3.4$ кЭ проводились с помощью постоянного магнита. Калибровка напряженности поля на образце проводилась с помощью датчика Холла.

Экспериментальные спектры поглощения ядер ^{57}Fe в исследованном образце с наночастицами показаны на рис.2 точками и вертикальными штрихами, отражающими статистическую погрешность. Отчетливо видно, что спектр наночастиц в отсутствие магнитного поля качественно демонстрирует магнитную СТС в виде перевернутого пятиступенчатого пьедестала, предсказанную в модели МУР для предела высоких температур (12) и медленной релаксации (10). Отклонения от идеальной формы спектра (рис.1f), очевидно, обусловлены сверткой спектра поглощения с функцией формы линии источника, разбросом частиц по размерам и конечностью температуры (параметра KV/kT). (Результирующая ширина лоренцевой линии $\Gamma = 2\Gamma_0 + \Delta\Gamma_s$,

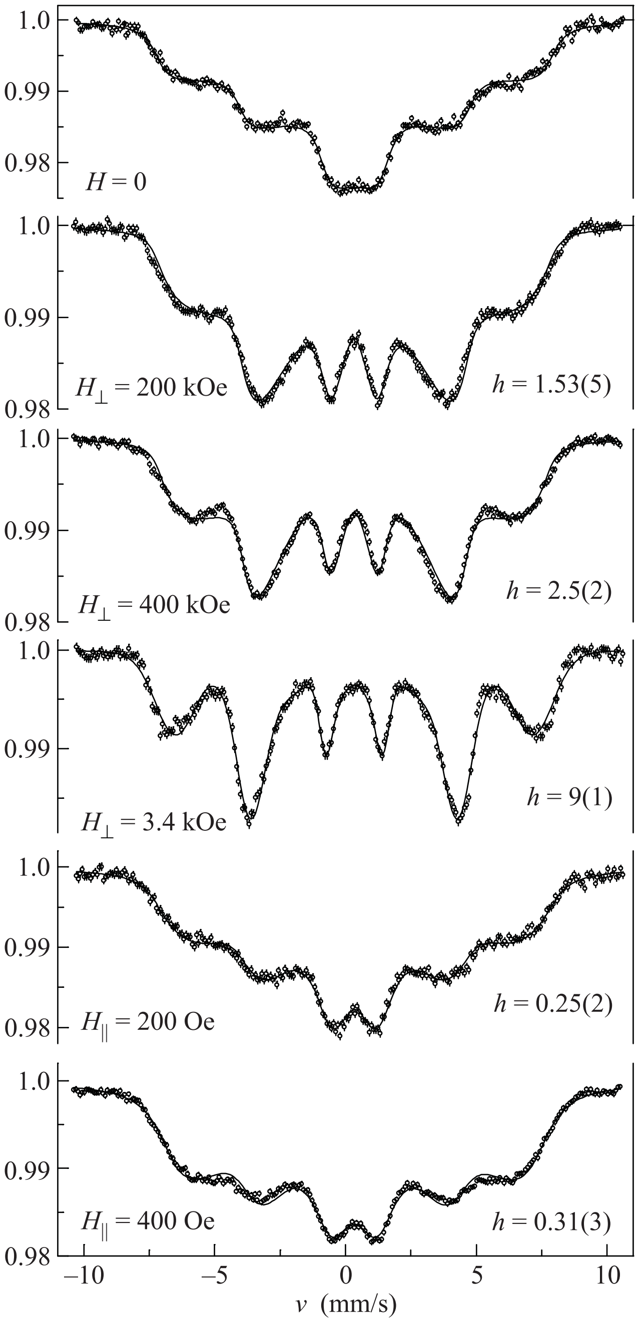

Рис.2. Мессбауэровские спектры (вертикальные штрихи) ядер ^{57}Fe в наночастицах в магнитном поле H разной напряженности и с разной ориентацией, параллельно ($H_{\|}$) и перпедикулярно ($H_{\perp}$) пучку гамма-квантов. Сплошными линиями показаны спектры ансамбля хаотически ориентированных однодоменных частиц, рассчитанные в моделях непрерывной диффузии и прецессии вектора однородной намагниченности с указанными значениями нормированного магнитного поля h (см. текст)

$\Gamma_0 = 0.194$ мм/с – естественная ширина резонансной линии ядер ^{57}Fe, $\Delta\Gamma_s = 0.025(3)$ мм/с – дополнительное уширение линии в источнике из калибровочных измерений, здесь и далее в скобках – среднеквадратичные отклонения в последнем знаке значения параметра.) Этот спектр был проанализирован в рамках модели МУР (см. [3, 4]), усреднения по гауссовскому распределению объемов частиц с шириной σ_V (см. [16]) и метода наименьших квадратов, а результирующий расчетный спектр показан сплошной линией на рис.1. Этому спектру соответствуют оптимальные значения параметров изомерного сдвига $\delta = 0.35(1)$ мм/с (соответствующего частицам γ-Fe_2O_3), $H_{hf} = 472(3)$ кЭ, $KV/k = 180(6)$ К, $K\sigma_V/k = 30(20)$ К и $D = 0.05(3)$ мм/с.

Отметим, что реализация формы экспериментального спектра, близкой к идеальной на рис.1f, обусловлена, прежде всего, малостью значений двух ключевых параметров: относительного разброса частиц по размерам, который свидетельствует о высоком качестве исходных феррожидкостей, и скорости диффузии, которая свидетельствует о слабости взаимодействия наночастиц с окружением (соседними наночастицами). Последнее обстоятельство позволяет провести качественный анализ формы спектра поглощения в пределе (10) и (12).

Действительно, в пределе (10) можно пренебречь влиянием релаксации и соответствующим стохастическим усреднением в базовом выражении для спектра поглощения в модели МУР (см. формулу (3) в [4]). Тогда спектр поглощения гамма-кванта с энергией $E = \hbar\omega$ определяется распределением Гиббса эффективного поля (3) по равновесной заселенности стохастических состояний (11), то есть сводится к усреднению по распределению эффективного сверхтонкого поля:

$$\sigma(\omega) = \int_0^1 L(\omega, h_{hf}) P(h_{hf}) dh_{hf}, \tag{15}$$

$$L(\omega, h_{hf}) = \frac{\sigma_a \Gamma_0^2}{4} \sum_\alpha \frac{|C_\alpha|^2 \langle F_\alpha(\theta_{\mathbf{k}})\rangle}{(\tilde{\omega} - \omega_\alpha(h_{hf}))^2 + \Gamma_0^2/4}, \tag{16}$$

где σ_a –эффективная толщина поглотителя, $\alpha = (m_e, m_g)$ нумерует переходы с проекциями спина ядра m_e и m_g на направление сверхтонкого поля, $\tilde{\omega} = \omega - E_0/\hbar$, E_0 – энергия резонансного перехода, интенсивности переходов на резонансных частотах

$$\omega_\alpha(h_{hf}) = (m_e\omega_e - m_g\omega_g) h_{hf} \tag{17}$$

определяются коэффициентами Клебша–Джордана C_α и функцией углового распределения интесивности излучения $F_\alpha(\theta_{\mathbf{k}})$ для заданного направления (угла θ_k) волнового вектора гамма-кванта $\mathbf{k}$ относительно “легкой” оси, которая для неполяризованного дипольного (ядра ^{57}Fe) излучения имеет вид [17]

$$\begin{aligned} F_{m_g,m_g}(\theta_{\mathbf{k}}) &\equiv F_0(\theta_{\mathbf{k}}) = \frac{3}{2}\sin^2\theta_{\mathbf{k}}, \\ F_{m_g\pm1,m_g}(\theta_{\mathbf{k}}) &\equiv F_\pm(\theta_{\mathbf{k}}) = \frac{3}{4}(1+\cos^2\theta_{\mathbf{k}}). \end{aligned} \tag{18}$$

Усреднение по ориентации “легких” осей для ансамбля хаотически ориентированных наночастиц дает $\langle F_\alpha(\theta_{\mathbf{k}})\rangle = 1$, но выражения (18) нам еще понадобятся чуть ниже. Сама же функция распределения

$$P(h_{hf}) = \exp[-\beta h_{hf}^2] \tag{19}$$

задается величиной эффективного энергетического барьера $\beta = KV/kT$. Выражения (6), (15) – (19) как раз и описывают форму спектров в правой колонке рис.1 и на рис.2 ($H = 0$). В пределе (12) функция (19) стремится к 1, то есть спектр представляет собой суперпозицию однородного распределения лоренцевых линий для каждого перехода в интервале частот $\tilde{\omega} \in [0, \omega_\alpha(1)]$ и описывается аналитическим выражением

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_a\Gamma_0}{2} \sum_\alpha \frac{|C_\alpha|^2}{\omega_\alpha(1)} \left(\arctan\frac{2\tilde{\omega}}{\Gamma_0} - \arctan\frac{2(\tilde{\omega} - \omega_\alpha(1))}{\Gamma_0}\right). \tag{20}$$

Поскольку $|\omega_\alpha(1)| \gg \Gamma_0$, из этого выражения видно, что во всех указанных интервалах $\tilde{\omega}$, за исключением малых областей шириной порядка Γ_0 на их концах, спектр представляет собой суперпозицию ступенчатых функций с отношением высоты ступеней пьедестала

$$I_{1,6} : I_{2,5} : I_{3,4} = 3 : \frac{2}{1-\tilde{g}_e} : \frac{1}{1-2\tilde{g}_e} = 1 : 1.15 : 2.14 \tag{21}$$

в соответствии со стандартной нумерацией линий магнитного секстета ядер ^{57}Fe (рис.1a) вместо индекса α, $\tilde{g}_e = 2g_e/(3g_e - g_g) = 0.422$. Именно такую форму демонстрирует спектр на рис.1f.

3. Спектры в магнитном поле. Теперь рассмотрим форму спектров, измеренных в магнитном поле (рис.2). Как видно на этом рисунке, уже в слабом поле с напряженностью всего 200 Э наблюдается существенная трансформация спектров СТС по сравнению со спектром в отсутствие поля, которая качественно отличается от их эволюции с температурой (см. рис.1 и [10]) и отражает особенности магнитной динамики образца. С увеличением напряженности поля, с одной стороны, увеличивается характерное искривление энергетических уровней на поверхности единичной сферы в соответствии с гамильтонианом (13), так что при $H > H_C$ остается единственный минимум энергии [15, 16], а с другой, усиливаются поляризационные эффекты в самих мессбауэровских спектрах, которые зависят от взаимной ориентации векторов $\mathbf{H}$ и $\mathbf{k}$ через соответствующее усреднение функций (18). В частности, в пределе сильного поля ($H \gg H_C$) должен наблюдаться четкий секстет линий с соотношением интенсивностей $I_{1,6} : I_{2,5} : I_{3,4} = 3:4:1$ и $3:0:1$ для $(\mathbf{Hk})/Hk = 1$ и 0, соответственно [18]. Как видно на рис.2, спектры в поперечном поле качественно демонстрируют как раз такую картину намагничивания наночастиц в режиме сильного ($H > H_C$) поля. В то же время, спектры в продольном поле при тех же значениях напряженности демонстрируют существенно меньшие поляризационные эффекты, качественно соответствующие режиму перемагничивания в слабом ($H < H_C$) поле [18], это, очевидно, связано с существенным влиянием размагничивающего поля для плоского образца, что поле внутри образца существенно слабее внешнего.

Для количественного описания этих эффектов нужно задать модель магнитной динамики, и единственным, реальным вариантом в настоящее время является феноменологическая модель [15, 16], в которой в качестве стохастических состояний каждой частицы рассматриваются прецессионные орбиты C_E вектора $\mathbf{M}$ для заданной энергии E, а каждое состояние (орбита) характеризуется средним по времени значением намагниченности $\overline{\mathbf{M}}(E)$ и заселенностью $W(E)$. Как отмечено выше, задача расчета мессбауэровских спектров в рамках этого общего подхода еще не решена, но она имеет не очень сложное и замкнутое решение в предельном случае (10). Действительно, если пренебречь влиянием релаксации, общие формулы для расчета спектра поглощения в этой модели [16, 18, 19] существенно упрощаются и сводятся, по аналогии с (15) – (19), к усреднению по распределению эффективного сверхтонкого поля, заданного вектором $\overline{\mathbf{M}}(E)$, с равновесной заселенностью $W(E)$:

$$\sigma(\omega) = \int\limits_0^{\pi/2} \sin\Theta d\Theta \times$$
$$\times \int\limits_{E_1}^{E_m} dE \sum_i L(\omega, \overline{M}_i(E,\Theta)/M_0) W_i(E,\Theta), \qquad (22)$$

где Θ – угол между направлением $\mathbf{H}$ и "легкой" осью, $E_1(\Theta)$ и $E_m(\Theta)$ – энергии абсолютных минимума и максимума (13), индекс i нумерует разные локальные состояния с одним значением E. Ключевым моментом для описания поляризационных эффектов является усреднение функции $F_\alpha(\theta_{\mathbf{k}}, E, \Theta)$ в (16) по хаотической ориентации "легких" осей, которое с учетом (18) сводится к следующим выражениям:

$$\langle F_0(\theta_{\mathbf{k}}, E, \Theta)\rangle = \frac{3}{2}\left(1 - \langle\cos^2\theta_{\mathbf{k}}\rangle_{E,\Theta}\right),$$
$$F_{\pm 1}(\theta_{\mathbf{k}}, E, \Theta) = \frac{3}{4}\left(1 + \langle\cos^2\theta_{\mathbf{k}}\rangle_{E,\Theta}\right), \qquad (23)$$
$$\langle\cos^2\theta_{\mathbf{k}}\rangle_{E,\Theta} = \cos^2\theta_\gamma \cos^2\tilde{\Theta}_i(E,\Theta) +$$
$$+ \sin^2\theta_\gamma \sin^2\tilde{\Theta}_i(E,\Theta)/2, \qquad (24)$$

где

$$\cos\theta_\gamma = (\mathbf{Hk})/Hk,$$

а

$$\cos\tilde{\Theta}_i(E,\Theta) = (\mathbf{H}\overline{\mathbf{M}}_i(E,\Theta))/H\overline{M}_i(E,\Theta).$$

Формулы (16), (17) и (22) – (24) позволяют рассчитать спектр поглощения для заданных значений внешних и модельных параметров. Наиболее привлекательным подходом для анализа экспериментальных спектров является их подгонка в рамках этой модели с ранее полученными значениями параметров KV и σ_V и дополнительным варьируемым параметром H_C, что позволяет легко восстановить остальные физические параметры [10]. Однако в нашем случае такая трактовка не дала адекватного описания экспериментальных спектров и свидетельствовала о существенном отличии реального магнитного поля внутри образца $\mathbf{H}_{in}$ от внешнего поля. Поэтому в качестве дополнительного варьируемого параметра было выбрано эффективное поле Стонера-Вольфарта [7]

$$h = H_{in}/H_C. \qquad (25)$$

Результирующие расчетные спектры показаны на рис.2 сплошными линиями, где также указаны оптимальные значения параметра h, и хорошо описывают экспериментальные данные. Полученные значения для случая поперечного поля можно трактовать как существенное увеличение вклада взаимодействия между частицами в эффективное поле $\mathbf{H}_{in}$ с увеличением напряженности поля. Например, трактовка значений h при $H_\perp = 200$ и 400 Э в рамках модели молекулярного поля

$$\mathbf{H}_{in} = \mathbf{H} + c_{ex}\overline{\mathbf{M}}, \qquad (26)$$

где $\overline{\mathbf{M}}$ – средняя намагниченность всего ансамбля частиц [15] и c_{ex} – константа обменного взаимодействия, позволяет оценить параметры $H_C = 260(30)$ Э и $c_{ex}M_0 = 550(50)$ Э. Вместе с тем самосогласованная трактовка значения h при $H_\perp = 3.4$ кЭ требует существенно более высокого значения $c_{ex}M_0 = 1500(200)$ Э. Само по себе наличие и увеличение с полем взаимодействия между частицами неудивительно, поскольку они достаточно крупные и обладают большим магнитным моментом, однако аккуратный анализ требует развития отдельной, самосогласованной модели для описания формирования $\mathbf{H}_{in}$ в образце, которое должно включать как взаимодействие между частицами, так и размагничивающее поле для адекватной трактовки спектров в продольном поле. Эта задача требует дальнейших исследований, здесь же отметим, что развитый формализм для описания мессбауэровских спектров существенно облегчает решение такой задачи.

Выражаем благодарность Российскому фонду фундаментальных исследований за финансовую поддержку этой работы.

1. M.A. Chuev and J. Hesse, in *Magnetic properties of solids*, Ed. K.B. Tamayo,. Nova Science Publishers, New York, 2009.
2. H.H. Wickman, in *Mössbauer effect methodology*, Ed. I.J. Gruverman, v.2, Plenum Press, New York, 1966.
3. D.H. Jones and K.K.P. Srivastava, Phys. Rev. B **34**, 7542 (1986).
4. М.А. Чуев, Письма в ЖЭТФ **83**, 668 (2006).
5. W.F. Brown, Jr., Phys. Rev. **130**, 1677 (1963).
6. А.М. Афанасьев, В.Е. Седов, ДАН СССР **289**, 1350 (1986); Изв. АН СССР, сер. физ. **50**, 2348 (1986).
7. E.C. Stoner and E.P. Wohlfarth, Phil. Trans. Royal Soc. London A **240**, 599 (1948).
8. J. van Lierop and D.H. Ryan, Phys. Rev. B **63**, 064406 (2001).
9. J. van Lierop and D.H. Ryan, Phys. Rev. Lett. **85**, 3021 (2000); Phys. Rev. B **65**, 104402 (2002); R.D. Desautels, J.M. Cadogan, and J. van Lierop, J. Appl. Phys. **105**, 07B506 (2009).
10. М.А. Чуев, В.М.Черепанов, М.А.Поликарпов, ДАН **430**, 40 (2010).
11. J. Hesse and H. Rübartsch, J. Phys. E: Sci. Instr. **7**, 526 (1974); M.A. Chuev, O. Hupe, H. Bremers et al., Hyperfine Interact. **126**, 407 (2000).
12. S. Mørup, H. Topsøe, and J. Lipka, J. Phys. **37**, C6-287 (1976); J.M. Williams, D.P. Danson, and C. Janot, Phys. Med. Biol. **23**, 835 (1978); E. Tronc, P. Prené, J.P. Jolivet et al., Hyperfine Interact. **95**, 129 (1995); Dormann, F. D'Orazio, F. Lucari et al., Phys. Rev. B **53**, 14291 (1996); I.P. Suzdalev, A.S. Plachinda, V.N. Buravtsev et al., Chem. Phys. Reports **17**, 1355 (1998); O. Hupe, M.A. Chuev, H. Bremers et al., J. Phys.: Condens. Matter. **11**, 10545 (1999); T. Kemény, D. Kaptás, L.F. Kiss et al., Hyperfine Interact. **130**, 181 (2000); D. Predoi, V. Kuncser, E. Tronc et al., J. Phys.: Condens. Matter. **15**, 1797 (2003).
13. S. Mørup, F. Bødker, P.V. Hendriksen, and S. Linderoth, Phys. Rev. B **52**, 287 (1995).
14. M. Eibschütz, and S. Shtrikman, J. Appl. Phys. **39**, 997 (1968); R.H. Lindquist, G. Constabaris, W. Kündig, and A.M. Portis, J. Appl. Phys. **39**, 1001 (1968).
15. М.А. Чуев, Письма в ЖЭТФ **87**, 807 (2008); ЖЭТФ **135**, 280 (2009).
16. M.A. Chuev, J. Phys.: Condens. Matter. **20**, 505201 (2008).
17. В.С. Шпинель, *Резонанс гамма-лучей в кристаллах*, М.: Наука, 1969.
18. М.А. Чуев, Изв. РАН, сер. физ. **74**, 318 (2010).
19. М.А. Чуев, ЖЭТФ **130**, 279 (2006).