О механизме температурной эволюции "симметричной" магнитной сверхтонкой структуры мессбауэровских спектров магнитных наночастиц к квадрупольному дублету линий

М. А. Чуев¹⁾

Физико-технологический институт РАН, 117218 Москва, Россия

Поступила в редакцию 31 мая 2011 г.

Проведено обобщение многоуровневой релаксационной модели мессбауэровских спектров ансамбля однодоменных частиц на случай наличия градиента электрического поля на ядрах с хаотической ориентацией его главных осей. Обобщенная модель позволяет включить в рассмотрение физические механизмы формирования сверхтонкой структуры спектров в реальной ситуации и численно описать качественные особенности температурной эволюции спектров от "симметричного" магнитного секстета к квадрупольному дублету линий, которая наблюдается в большинстве экспериментальных спектров ядер ⁵⁷ Fe в магнитных наночастицах.

Рекордно высокая разрешающая способность мессбауэровской спектроскопии и разнообразие форм спектров поглощения дает возможность проведения прецизионной диагностики физико-химических характеристик магнитных наночастиц, находящихся в различных средах, что предопределяет высокую информативность этого метода для решения широкого класса задач физики, химии, биологии и медицины. Основой методических достижений в решении прикладных задач является специфический характер эволюции спектров наночастиц от хорошо разрешенной магнитной сверхтонкой структуры (CTC, секстет линий для ядер ⁵⁷Fe) при низких температурах к одиночной линии или квадрупольному дублету при высоких [1]. Простейшее качественное объяснение эффекта коллапса СТС в одиночную линию (пунктирные линии на рис. 1) было дано в рамках двухуровневой модели релаксации (ДУР) однодоменной частицы с аксиальной магнитной анизотропией [2] на языке увеличения (с температурой) вероятности перехода магнитных моментов частиц в единицу времени из одного локального минимума энергии в другой [3]:

$$p = p_0 \exp(-KV/kT),\tag{1}$$

где p_0 – некоторая константа, K – константа аксиальной магнитной анизотропии, V – объем частицы, T – температура, k – константа Больцмана.

Наиболее адекватной с физической точки зрения моделью для описания этого эффекта является многоуровневая релаксационная (МУР) модель [3], которая учитывает тепловые возбуждения в локальных минимумах энергии. Она также эффективно используется при количественном анализе экспериментальных спектров наночастиц [4-6]. Модель МУР не только более реалистична по сравнению с моделью ДУР. Она также позволяет описать качественно новые формы СТС-спектров медленно релаксирующих наночастиц [6], очень часто наблюдаемые в экспериментах. Однако даже модель МУР принципиально не может описать эффекта коллапса магнитной сверхтонкой структуры в дублет линий. Это не позволяет провести самосогласованного анализа всей температурной серии спектров, поскольку приходится вводить эффективное описание высокотемпературного дублета линий с произвольными параметрами [4]. Именно это обстоятельство сильно сдерживает использование модели МУР для анализа экспериментальных данных, поскольку в большинстве из них наблюдаются как раз высокотемпературные дублеты линий. Этот недостаток теории наиболее остро проявляется в последнее время, поскольку акцент исследований непрерывно смещается от диагностики самих магнитных частиц к изучению их функционального поведения в различных приложениях, например биотрансформации наночастиц в живом организме [5, 7].

Вместе с тем качественные особенности именно такого эффекта коллапса (в дублет линий) были теоретически описаны еще в 60-х годах прошлого века [8] в рамках ДУР-модели и гамильтонианов комбинированного сверхтонкого магнитного и квадрупольного взаимодействия ядра в основном (g) и возбужденном (e) состояниях ядер ⁵⁷ Fe:

$$\hat{H}^{(g,e)} = \hat{H}^{(g,e)}_{hf} + \hat{H}^{(e)}_{Q} = = -g_{g,e} \mu_{N} H_{hf} \hat{I}^{(g,e)}_{z} + q \left[\hat{I}^{2}_{z'} - \frac{1}{3} I_{e} (I_{e} + 1) \right],$$
(2)

Письма в ЖЭТФ том 94 вып. 3-4 2011

¹⁾ e-mail: chuev@ftian.ru



Рис. 1. Спектры поглощения ядер ⁵⁷ Fe в ансамбле однодоменных частиц, рассчитанные в рамках модели ДУР при наличии квадрупольного взаимодействия (q = 0.3 мм/c, сплошные линии) и в его отсутствие (q = 0, пунктирные линии) для разных значений эффективного энергетического барьера KV/kT при $p_0 = 10^{10} \text{ c}^{-1}$. Здесь и далее $H_{\rm hf} = 500 \text{ к}$ Э

где $\mu_{\rm N}$ — ядерный магнетон, $g_{\rm g,e}$ — ядерные gфакторы, $I_{\rm g} = 1/2$ и $I_{\rm e} = 3/2$ — ядерные спины, $\hat{I}_z^{({\rm g},{\rm e})}$ операторы их проекций на направление сверхтонкого поля на ядре $\mathbf{H}_{\rm hf}$, $\hat{I}_{z'}$ — оператор проекции ядерного спина в возбужденном состоянии на направление главной оси z' градиента электрического поля на ядре, $q = 3eQ_{\rm e}V_{z'z'}/[4I_{\rm e}(2I_{\rm e}-1)]$ — константа квадрупольного взаимодействия, e — заряд электрона, $Q_{\rm e}$ квадрупольный момент ядра, $V_{z'z'}$ — наибольшее (по абсолютной величине) из главных значений тензора градиента. Помимо самого эффекта коллапса магнитной СТС в дублет линий, расчеты в этой модели демонстрируют качественно новую форму спектров в виде асимметричного квадрупольного дублета в случае быстрой, но не предельно быстрой релакса-

9 Письма в ЖЭТФ том 94 вып. 3-4 2011

ции, а также проявление в форме спектров комбинированного действия стохастических (релаксационных) и квантово-механических переменных в случае некоммутирующих зеемановского и квадрупольного членов в (2), когда оси z и z' не совпадают [8].

313

В этой модели наблюдается и еще один хорошо известный эффект: низкотемпературные спектры демонстрируют несимметричное расположение линий магнитной СТС относительно центра тяжести спектра, обусловленное слабым (по сравнению с магнитным) квадрупольным взаимодействием (см. рис. 1 в [8]). При этом в соответствии с гамильтонианами (2) спектральные положения линий эффективного магнитного секстета в данном случае зависят не только от величин q и $H_{\rm hf}$, но и от угла θ между осями z и z':

$$\omega_{m_{e}m_{g}} \approx (g_{e}m_{e} - g_{g}m_{g})\mu_{N}H_{hf} \pm (1 + 3\cos 2\theta)q/4,$$
 (3)

где $m_{
m e}$ и $m_{
m g}$ – проекции спина ядра на направление сверхтонкого поля, а знаки "+" и "-" соответствуют ядерным переходам с $|m_{
m e}| = 3/2$ и $|m_{
m e}| = 1/2$. В то же время в большинстве экспериментальных спектров наночастиц квадрупольный сдвиг магнитных компонент при низких температурах полностью отсутствует, т.е. наблюдается симметричный относительно центра спектра секстет линий, который формально соответствует (3) с "магическим" углом $heta = 54.7^\circ$. Последнее объяснение довольно искусственно, поскольку симметричная магнитная СТС наблюдается в спектрах наночастиц разного состава. Для ансамбля хаотически ориентированных наночастиц можно предложить более естественное объяснение этого факта, если учесть хаотическую ориентацию осей магнитной анизотропии, обусловленной формой частиц, относительно главной оси градиента электрического поля, которая связана с кристаллической структурой частиц. Последнее, в свою очередь, также требует прямого моделирования спектров, причем это крайне желательно в модели МУР.

И наконец, существует еще один принципиально иной физический механизм, объясняющий как симметричную магнитную СТС экспериментальных спектров при низких температурах, так и ее коллапс в эффективный дублет линий при высоких температурах. Этот механизм основан на предположении о том, что константа квадрупольного взаимодействия пренебрежимо мала (что вполне оправдано, например, для наночастиц α -Fe и γ -Fe₂O₃), а эффективный дублет линий имеет не электрическую, а магнитную природу и обусловлен взаимодействием между частицами [9]. При этом качественный характер такого объяснения подтверждается прямым моделированием и численным анализом температурной серии экспериментальных спектров конкретных наночастиц [10].

Очевидно, что решение описанного выше круга проблем в каждом конкретном случае настоятельно требует развития формализма для расчета мессбауэровских спектров наночастиц в реалистичных моделях, в частности обобщения модели МУР на случай наличия комбинированного сверхтонкого взаимодействия (2) и хаотической ориентации осей магнитной анизотропии, а также его оптимизации для проведения количественного анализа экспериментальных спектров. Решению этой задачи и посвящена настоящая работа.

Для проведения такого обобщения сначала запишем базовые формулы в ДУР-модели при наличии взаимодействия (2), когда вероятность стохастических переходов между двумя локальными энергетическими состояниями (с противоположными направлениями $\mathbf{H}_{\rm hf}$) определяется выражением (1). В этом случае расчет мессбауэровских спектров ансамбля наночастиц проводится в рамках стандартного стохастического подхода [11], в соответствии с которым сечение поглощения гамма-кванта с энергией $E = \hbar \omega$ и поляризацией η для заданного угла θ описывается следующим общим выражением [12]:

$$\sigma(\omega, \theta) = -rac{\sigma_{\mathbf{a}}\Gamma_{\mathbf{0}}}{2} \mathrm{Im} \sum_{\eta} \mathrm{Sp} * \hat{V}_{\eta} \langle |\hat{\mathbf{A}}^{-1}(\tilde{\omega}, \theta|1\rangle \hat{V}_{\eta}^{+}, \quad (4)$$

где $\sigma_{\rm a}$ — эффективная толщина поглотителя, $\Gamma_0 \equiv \Xi \Gamma_0/\hbar$ — ширина уровня энергии возбужденного состояния ядра в частотных единицах, $\tilde{\omega} = \omega - E_0/\hbar$, E_0 — энергия резонансного перехода, \hat{V}_η — оператор взаимодействия гамма-кванта с ядром, $\langle W| = (1/2 \ 1/2)$ и $|1\rangle$ — вектор заселенности и единичный столбец стохастических состояний. Супероператор

$$\hat{\mathbf{A}}(\tilde{\omega},\theta) = \tilde{\omega} + i\Gamma_0/2 - \hat{\mathbf{L}}(\theta) + i\hat{\mathbf{P}}$$
(5)

определяется лиувиллевским оператором сверхтонкого взаимодействия, который диагонален по стохастическим переменным и в модели ДУР задается блочной матрицей [13]:

$$\hat{\mathbf{L}}(\theta) = \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{L}}_{1}(\theta) & 0\\ 0 & \hat{\mathbf{L}}_{2}(\theta) \end{pmatrix} = \\ = \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{L}}_{hf} + \hat{\mathbf{L}}_{Q}(\theta) & 0\\ 0 & -\hat{\mathbf{L}}_{hf} + \hat{\mathbf{L}}_{Q}(\theta) \end{pmatrix}, \qquad (6)$$

а также релаксационной матрицей:

$$\hat{\mathbf{P}} = \begin{pmatrix} p\hat{\mathbf{I}}_{n} & -p\hat{\mathbf{I}}_{n} \\ -p\hat{\mathbf{I}}_{n} & p\hat{\mathbf{I}}_{n} \end{pmatrix}, \qquad (7)$$

где $\hat{\mathbf{I}}_n$ — единичный супероператор в пространстве $(2I_g + 1)(2I_e + 1)$ ядерных переменных. Супероператоры $\hat{\mathbf{L}}_i$ задаются гамильтонианами сверхтонкого взаимодействия в пространстве ядерных переменных [14]:

$$(\hat{\mathbf{L}}_i)_{m_{\mathbf{c}}m_{\mathbf{g}}m'_{\mathbf{c}}m'_{\mathbf{g}}} = \hat{H}_{m_{\mathbf{c}}m'_{\mathbf{c}}}^{(\mathbf{e})} \delta_{m_{\mathbf{g}}m'_{\mathbf{g}}} - H_{m_{\mathbf{g}}m'_{\mathbf{g}}}^{(\mathbf{g})} \delta_{m_{\mathbf{c}}m'_{\mathbf{c}}}.$$

Усреднение по поляризации падающего излучения в (4) для ансамбля хаотически ориентированных наночастиц и неполяризованного источника излучения сводится к суммированию по трем ортогональным поляризациям в соответствии с процедурой, подробно описанной в [15]:

$$\sum_\eta \mathrm{Sp} * \hat{V}_\eta \hat{\mathbf{G}}(ilde{\omega}, heta) \hat{V}_\eta^+ = rac{1}{3} \sum_{\eta=x,y,z} \mathrm{Sp} * \hat{J}_\eta \hat{\mathbf{G}}(ilde{\omega}, heta) \hat{J}_\eta^+.$$

Усреднение сечения поглощения (4) по хаотическому распределению осей анизотропии дает окончательный результат в этой модели:

$$\sigma(\omega) = \int \sigma(\omega, \theta) \sin \theta d\theta.$$
 (8)

Формулы (1), (2), (4)-(8) позволяют рассчитать спектр поглощения ансамбля однодоменных частиц при наличии квадрупольного взаимодействия в рамках модели ДУР для заданных значений модельных параметров (q, H_{hf}, p₀, K и V) и температуры. Типичные расчетные спектры для различных величин эффективного энергетического барьера KV/kT показаны на рис. 1 сплошными линиями. Эти спектры демонстрируют основные особенности релаксационной трансформации СТС суперпарамагнитных частиц с ростом температуры [1]: хорошо разрешенную магнитную СТС при низких температурах, когда магнитные моменты наночастиц "заморожены" в локальных минимумах энергии; уширение линий спектра, когда скорость переходов между локальными состояниями становится сравнимой со временем жизни ядра в возбужденном состоянии; размытую СТС при промежуточных температурах, когда скорость переходов становится сравнимой с ларморовскими частотами ядер; коллапс магнитной СТС при высоких температурах. Учет слабого квадрупольного взаимодействия описывает перечисленные выше эффекты: коллапс СТС в квадрупольный дублет линий в пределе высоких температур и появление асимметрии линий дублета с понижением температуры (в соответствии с [8]), а также симметричный магнитный секстет при низких температурах (в отличие от [8]). Отметим также еще один новый аспект – асимметричную форму линий секстета в пределе низких

Письма в ЖЭТФ том 94 вып. 3-4 2011

315

температур (медленной релаксации) в соответствии с распределением спектральных линий (3) по углу θ , к которому мы вернемся ниже.

Модель МУР основана на квантовомеханическом описании однородно намагниченной частицы с гамильтонианом [3, 6, 16]

$$\hat{H} = -KV\hat{S}_z^2/S^2,\tag{9}$$

полным спином S и 2S+1 состояниями (стохастическими) проекции спина на ось z ($m = -S, -S+1, \ldots, S$), переходы между которыми обусловлены поперечными компонентами случайного поля. В этой модели спектр поглощения формально описывается тем же общим выражением (4), которое в отсутствие квадрупольного взаимодействия существенно упрощается. Супероператоры $\hat{\mathbf{L}}_i$ сверхтонкого взаимодействия становятся обычными диагональными операторами с элементами, соответствующими различным состояниям ядерной системы во флуктуирующем окружении:

$$(\hat{\mathbf{L}}_m)_{\alpha} = \omega_{\alpha} m / S,$$

где $\alpha = (m_{\rm e}, m_{\rm g}), \, \omega_{\alpha}$ определяется выражением (3) с q = 0, а само выражение (4) сводится к взвешенной сумме по резонансным переходам с коэффициентами Клебша–Джордана C_{α} [16]:

$$\sigma(\omega) = -\frac{\sigma_{\rm a}\Gamma_0}{2} \text{Im} \sum_{\alpha} |C_{\alpha}|^2 \langle W | \hat{A}_{\alpha}^{-1}(\omega) | 1 \rangle.$$
(10)

Релаксационная матрица (6) в этой модели становится трехдиагональной:

$$P_{mm\pm1} = -p_{mm\pm1}f_{mm\pm1}, \quad P_{mm} = -P_{mm-1} - P_{mm+1},$$
(11)

а ее элементы определяются коэффициентом диффузии D [3, 16, 17]:

$$p_{mm+1} = p_{m+1m} = D[S(S+1) - m(m+1)],$$

и энергией анизотропии:

которая также задает вектор заселенности стохастических состояний $W_m = e^{-E_m/kT}/\sum e^{-E_k/kT}.$

В силу своего одномерного характера модель МУР довольно легко реализуется на персональном компьютере, поскольку расчет спектра поглощения фактически сводится к решению системы линейных

Письма в ЖЭТФ том 94 вып. 3-4 2011

уравнений в пространстве стохастических переменных с числом операций порядка 2S + 1 [3]:

$$A_{\alpha}(\omega)|X\rangle = |1\rangle. \tag{12}$$

Типичные спектры, рассчитанные в этой модели, показаны на рис. 2 и 3 пунктирными линиями. Если



Рис. 2. Спектры поглощения ядер ⁵⁷ Fe в ансамбле однодоменных частиц, рассчитанные в рамках модели МУР для $D = 2.2 \cdot 10^9 \text{ c}^{-1}$ при q = 0 (пунктирные линии) и 0.3 мм/с (сплошные линии) при разных значениях KV/kT

скорость релаксационных переходов (коэффициент диффузии D) сравнима с обратным временем жизни ядра в возбужденном состоянии (шириной Γ_0) или превышает его, то в целом наблюдается температурная эволюция формы спектров (рис. 2), характерная для модели ДУР (рис. 1, пунктирные линии). Единственным (но очень существенным) преимуществом модели МУР является более реалистичное описание экспериментальных спектров [4–6]. Вместе с тем, модель МУР позволяет качественно описать другую трансформацию спектров с ростом температуры, часто наблюдаемую в экспериментах: асимметричные



Рис. 3. Спектры поглощения ядер ⁵⁷ Fe в ансамбле однодоменных частиц, рассчитанные в рамках модели МУР в пределе медленной релаксации ($D \ll \Gamma_0$) при q = 0(пунктирные линии) и 0.3 мм/с (сплошные линии) при разных значениях KV/kT

линии с резкими внешними фронтами, сильно размытыми к центру спектра внутренними фронтами при низких температурах и спектр поглощения в виде пятиступенчатого пьедестала, перевернутого в стандартной геометрии на пропускание, при высоких (рис. 3, пунктирные линии), т.е. в режиме медленной релаксации ($D \ll \Gamma_0$) [6].

Как видно из выражений (4)–(10), решение поставленной задачи, т.е. обобщение модели МУР на случай наличия комбинированного сверхтонкого взаимодействия (2) и хаотической ориентации осей магнитной анизотропии, фактически сводится к расчету спектра поглощения по формуле (4). При этом выражения (6) и (7) надо заменить супероператорами более общего вида. Лиувиллевский оператор сверхтонкого взаимодействия остается блочной матрицей, диагональной по 2S + 1 стохастическим переменным:

$$(\hat{\mathbf{L}}(\theta))_{mj} = \hat{\mathbf{L}}_m(\theta)\delta_{mj} = [\hat{\mathbf{L}}_{\rm hf}m/S + \hat{\mathbf{L}}_{\rm Q}(\theta)]\delta_{mj}, \quad (13)$$

а релаксационная матрица диагональна по ядерным переменным и, в соответствии с (11), остается трехдиагональной по стохастическим:

$$\hat{\mathbf{P}} = \hat{P} \otimes \hat{\mathbf{I}}_{\mathrm{n}}.\tag{14}$$

Сама по себе запись общих выражений (4), (5), (8), (11), (13), (14), по которым можно рассчитать спектр поглощения ансамбля однодоменных частиц в модели МУР при наличии квадрупольного взаимодействия, тривиальна. Однако эта актуальная уже почти полвека задача до сих пор не была решена, прежде всего потому, что в процессе вычислений необходимо оперировать матрицами большого ранга: $(2S + 1)(2I_g + 1)(2I_e + 1)$. На самом деле: процедура расчета может быть существенно оптимизирована с учетом специального вида матриц (13) и (14) на основе ключевого в исходной модели МУР перехода от формального обращения матриц (5) в (10) к решению системы линейных уравнений (12).

Действительно, с помощью стандартного LUпреобразования блочную матрицу $\hat{\mathbf{A}}(\tilde{\omega}, \theta)$ можно представить в виде произведения нижней и верхней двухдиагональных матриц, блочных по стохастическим переменным:

$$\hat{\mathbf{A}} = \hat{\mathbf{A}}_L \hat{\mathbf{A}}_U, \tag{15}$$

где две диагонали заданы, $(\hat{\mathbf{A}}_L)_{mm-1} = -iP_{mm-1}\hat{\mathbf{I}}_n$ и $(\hat{\mathbf{A}}_U)_{mm} = \hat{\mathbf{I}}_n$, а две другие находятся из рекуррентных соотношений $(\hat{\mathbf{A}}_L)_{11} = (\hat{\mathbf{A}})_{11}, \ (\hat{\mathbf{A}}_U)_{12} =$ $= -iP_{12}(\hat{\mathbf{A}}_L)_{11}^{-1}, \ (\hat{\mathbf{A}}_L)_{22} = (\hat{\mathbf{A}})_{22} + iP_{21}(\hat{\mathbf{A}}_U)_{12}, \dots,$ $(\hat{\mathbf{A}}_L)_{mm} = (\hat{\mathbf{A}})_{mm} + iP_{mm-1}(\hat{\mathbf{A}}_U)_{m-1m}, \ (\hat{\mathbf{A}}_U)_{mm+1} =$ $= -iP_{mm+1}(\hat{\mathbf{A}}_L)_{mm}^{-1}, \dots$ Тогда расчет спектра поглощения по формуле (4) сводится к последовательному решению двух систем линейных уравнений для блочных матриц:

$$\hat{\mathbf{A}}_L |\mathbf{Y}\rangle = \hat{\mathbf{I}}_n |1\rangle, \ \ \hat{\mathbf{A}}_U |\mathbf{X}\rangle = |\mathbf{Y}\rangle.$$
 (16)

Сами решения снова находятся из рекуррентных соотношений

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{y}}_1 &= (\hat{\mathbf{A}}_L)_{11}^{-1}, \quad \hat{\mathbf{y}}_2 &= (\hat{\mathbf{A}}_L)_{22}^{-1} (\hat{\mathbf{I}}_n + iP_{21} \hat{\mathbf{y}}_1), \dots, \\ \hat{\mathbf{y}}_m &= (\hat{\mathbf{A}}_L)_{mm}^{-1} (\hat{\mathbf{I}}_n + iP_{mm-1} \hat{\mathbf{y}}_{m-1}), \dots, \\ \hat{\mathbf{x}}_{2S+1} &= \hat{\mathbf{y}}_{2S+1}, \quad \hat{\mathbf{x}}_{2S} &= \hat{\mathbf{y}}_{2S} - (\hat{\mathbf{A}}_U)_{2S,2S+1} \hat{\mathbf{x}}_{2S+1}, \dots, \\ \hat{\mathbf{x}}_m &= \hat{\mathbf{y}}_m - (\hat{\mathbf{A}}_U)_{mm+1} \hat{\mathbf{x}}_{m+1}, \dots. \end{aligned}$$

Как видно из этих выражений, для расчета спектра поглощения в обобщенной модели МУР все равно требуется порядка 2S + 1 операций, но уже с блочными матрицами (8-го ранга для ядер ⁵⁷Fe). Значит,

Письма в ЖЭТФ том 94 вып. 3-4 2011

эта модель также легко реализуется на персональном компьютере даже с учетом усреднения (8).

Типичные спектры, рассчитанные в этой модели, показаны на рис. 2 и 3 сплошными линиями. Эти спектры демонстрируют все ранее перечисленные качественные особенности релаксационной трансформации СТС магнитных наночастиц, раздельно описанные в моделях ДУР с учетом квадрупольного взаимодействия [8] и исходной модели МУР [3], а также эволюцию симметричного магнитного секстета при низких температурах к квадрупольному дублету линий в пределе высоких температур, наблюдаемую в модели ДУР, с учетом усреднения по хаотическому распределению осей (рис. 1). Вместе с тем в пределе медленной релаксации наблюдаются качественно новые формы спектров (рис. 3): при высоких температурах на нижней ступени перевернутого пятиступенчатого пьедестала появляется провал, обусловленный вкладом стохастических состояний с малыми *m*, для которых квадрупольное взаимодействие становится сильным по сравнению с эффективным магнитным взаимодействием (см. (13)), причем последнее определяет слабое расщепление линий эффективного дублета в соответствии с (2) [15]; спектры при низких температурах демонстрируют слабую асимметрию, но уже не положений, а интенсивности и ширины каждой пары спектральных компонент с противоположными знаками проекций me и mg (наиболее отчетливо это прослеживается для пары крайних линий секстета), что, очевидно, связано с комбинированным действием упомянутых ранее асимметричных линий в модели ДУР при наличии квадрупольного взаимодействия (рис. 1) и в исходной модели МУР (пунктирные линии на рис. 3). Обе обнаруженные особенности часто наблюдаются в экспериментах, однако ранее они не находили объяснения.

В заключение отметим, что наряду с очевидным преимуществом использования обобщенной модели МУР для анализа температурных серий мессбауэровских спектров наночастиц развитый в настоящей работе формализм несложно обобщить на случай спектров, измеренных в магнитном поле [9]. При этом для внешнего поля с напряженностью, большей критического поля полного перемагничивания частиц, это обобщение делается автоматически путем соответствующей модификации лиувиллевского оператора сверхтонкого взаимодействия (13).

317

Автор выражает благодарность РФФИ за финансовую поддержку этой работы.

- 1. И.П. Суздалев, Динамические эффекты в гаммарезонансной спектроскопии, М.: Атомиздат, 1979.
- H. H. Wickman, in Mössbauer effect methodology, Ed. I. J. Gruverman, Plenum Press, N.Y., 1966, V.2.
- D. H. Jones and K. K. P. Srivastava, Phys. Rev. B 34, 7542 (1986).
- J. van Lierop and D. H. Ryan, Phys. Rev. Lett. 85, 3021 (2000); Phys. Rev. B 63, 064406 (2001); Phys. Rev. B 65, 104402 (2002); R. D. Desautels, J. M. Cadogan, and J. van Lierop, J. Appl. Phys. 105, 07B506 (2009).
- M. A. Chuev, V. M. Cherepanov, S. M. Deyev et al., AIP Conf. Proc. 1311, 322 (2010).
- М. А. Чуев, В. М. Черепанов, М. А. Поликарпов, Письма в ЖЭТФ 92, 21 (2010).
- M. P. Nikitin, R. R. Gabbasov, V. M. Cherepanov et al., AIP Conf. Proc. **1311**, 401 (2010).
- 8. M. Blume and J. A. Tjon, Phys. Rev. 165, 446 (1968).
- M. A. Chuev, J. Phys.: Condens. Matter. 20, 505201 (2008).
- М. А. Chuev, О. Hupe, А. М. Afanas'ev et al., Письма в ЖЭТФ 76, 656 (2002); М. А. Чуев, В. М. Черепанов, М. А. Поликарпов, Доклады АН 430, 40 (2010).
- 11. P.W. Anderson, J. Phys. Soc. Jpn. 9, 316 (1954).
- A. M. Afanas'ev, M. A. Chuev, and J. Hesse, Phys. Rev. В 56, 5489 (1997); А. М. Афанасьев, М. А. Чуев, Ю. Гессе, ЖЭТФ 113, 1799 (1998); ЖЭТФ 116, 1001 (1999).
- M. A. Polikarpov, V. M. Cherepanov, M. A. Chuev, and S.S. Yakimov, J. Magn. Magn. Mater. 135, 361 (1994).
- 14. R. Zwanzig, Physica 30, 1109 (1964).
- 15. М. А. Чуев, ЖЭТФ **130**, 279 (2006).
- 16. М.А. Чуев, Письма в ЖЭТФ 83, 668 (2006).
- 17. W. F. Brown, Jr., Phys. Rev. 130, 1677 (1963).