

## ЭФФЕКТ КОЛЛАПСА В МОДЕЛИ НЕВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩИХ ЧАСТИЦ СТОНЕРА–ВОЛЬФАРТА

*А. М. Афанасьев, М. А. Чувев\**

*Физико-технологический институт Российской академии наук  
117218, Москва, Россия*

*Ю. Хессе†*

*Институт металлофизики и ядерной физики, Технический университет Брауншвайга  
D-38106, Брауншвайг, Германия*

Поступила в редакцию 2 декабря 1997 г.

Разработана теория мессбауэровских спектров невзаимодействующих частиц Стонера–Вольфарта (СВ) при воздействии радиочастотных магнитных полей, которая позволяет проводить расчеты спектров поглощения для произвольных значений частоты и амплитуды радиочастотного поля. Обсуждаются основные особенности модели Стонера–Вольфарта. С помощью формализма лиувиллевских супероператоров результаты обобщаются для случая произвольно меняющегося во времени сверхтонкого поля на ядре. С целью понимания качественных особенностей эффекта коллапса, наблюдаемых в мессбауэровских спектрах частиц СВ, специально рассмотрен случай циркулярно поляризованного сверхтонкого поля, для которого получено аналитическое выражение для описания мессбауэровского спектра. Также проанализирован предельный случай слабых магнитных радиочастотных полей, в котором прослежено резонансное поведение мессбауэровских линий в зависимости от частоты радиочастотного поля.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время все больший интерес приобретает методика исследования мессбауэровских спектров сверхтонкой структуры при воздействии на образец внешнего магнитного радиочастотного (РЧ) поля. Данный метод позволяет изучать релаксационные свойства магнитных сплавов на частотах порядка сотни МГц, что представляет большой практический интерес. По этой проблеме опубликовано большое количество экспериментальных работ [1–11], в которых качественно продемонстрировано разнообразное поведение формы мессбауэровских спектров в зависимости от частоты и амплитуды РЧ поля. Хорошо разрешенная в отсутствие РЧ поля сверхтонкая структура по мере повышения амплитуды РЧ поля схлопывается в одиночную линию. Это явление, обнаруженное Пфайффером в 1971 г., получило название эффекта коллапса.

Что же касается теоретических исследований в этой области, то фактически они еще только начинаются. В опубликованных до настоящего времени теоретических работах [12–14] анализировался лишь случай предельно сильных РЧ полей и не содержится

---

\*E-mail: chuev@labdif.crystal.msk.su

†J. Hesse, Institut für Metallphysik und Nucleare Festkörperphysik, Technische Universität Braunschweig, D-38106, Braunschweig, Deutschland.

даже сколь-нибудь грубого описания для РЧ полей произвольной интенсивности. Лишь совсем недавно авторами настоящей статьи была впервые предложена теория, которая в рамках определенной модели позволяла рассчитывать мессбауэровские спектры при произвольных частотах и амплитудах РЧ поля [15].

В последней работе магнитный сплав по аналогии с моделью Стонера–Вольфарта (СВ) [16] рассматривался как совокупность однородно намагниченных малых частиц с хаотически ориентированными осями легчайшего намагничивания. При этом процесс перемагничивания под действием РЧ поля рассматривался как некие случайные перескоки одного направления оси легчайшего намагничивания на обратное. Это предположение в значительной степени упрощало анализ и позволило в замкнутой форме получить выражение для мессбауэровского спектра поглощения. Даже в этом простейшем случае конечный результат имел весьма нетривиальную форму и представлял собой двукратный интеграл от операторной функции. Тем не менее полученные формулы допускают компьютерную реализацию, и в работе [15] рассмотрен ряд конкретных примеров (подробности см. в [15]).

Совершенно очевидно, что рассмотренная в работе [15] модель не является общей. Например, в модели Стонера–Вольфарта [16] перемагничивание частицы под действием магнитного поля происходит с отклонением направления магнитного момента частицы от оси легчайшего намагничивания. Учет этого обстоятельства приводит к сильному усложнению задачи вычисления мессбауэровских спектров поглощения и требует привлечения более тонких математических методов анализа. Тем не менее, если строго следовать модели СВ, в которой магнитная релаксация допускает относительно простое математическое описание, можно и в этом случае получить некоторые замкнутые выражения для мессбауэровских спектров поглощения и провести конкретные расчеты при произвольных амплитудах и частотах РЧ поля. Именно этому вопросу и посвящена настоящая работа. При этом ниже мы будем ориентироваться строго на модель СВ в той форме, в которой она была предложена в работе авторов [16], где не учитывалось взаимодействие между частицами.

В разд. 2 дается подробный вывод формул, описывающих мессбауэровские спектры поглощения в случае, когда зависящее от времени сверхтонкое поле на ядре меняет свое направление на обратное, т. е. остается параллельным одной и той же оси. Модель Стонера–Вольфарта кратко обсуждается в разд. 3. В разд. 4 результаты разд. 2 обобщаются на случай произвольно меняющегося во времени сверхтонкого магнитного поля с помощью замены гамильтоновых операторов на лиувиллевские супероператоры. Для понимания особенностей поведения мессбауэровских спектров в модели СВ в разд. 5 специально рассмотрен случай циркулярно поляризованного сверхтонкого поля. Этот пример допускает простое аналитическое описание и позволяет выяснить ряд новых особенностей эффекта коллапса, проявляющихся в мессбауэровских спектрах поглощения в модели СВ. В разд. 6 анализируется случай слабых РЧ полей, где также имеется существенное упрощение общих выражений и в четкой форме прослеживается резонансный характер зависимости мессбауэровских спектров от частоты РЧ поля.

## 2. МЕССБАУЭРОВСКИЕ СПЕКТРЫ СВЕРХТОНКОЙ СТРУКТУРЫ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ РАДИОЧАСТОТНОГО ПОЛЯ В АДИАБАТИЧЕСКОМ ПРИБЛИЖЕНИИ. ДЕТЕРМИНИРОВАННОЕ ОПИСАНИЕ СВЕРХТОНКОГО ПОЛЯ

Влияние РЧ поля на спектры сверхтонкой структуры сказывается через действующее на ядро сверхтонкое поле  $\mathbf{H}_{hf}(t)$ , которое под действием РЧ поля через сложные релаксационные процессы начинает зависеть от времени. Наиболее простая и физически ясная ситуация реализуется в случаях, когда релаксационные процессы достаточно быстры, так что  $\mathbf{H}_{hf}(t)$  следует за некоторыми макроскопическими характеристиками образца, например, за намагниченностью  $\mathbf{M}_i(t)$  частицы в модели СВ, которая в свою очередь меняется во времени за счет воздействия РЧ поля. Если модель перемагничивания задана, то  $\mathbf{M}_i(t)$ , а следовательно, и  $\mathbf{H}_{hf}(t)$  можно считать известными функциями, при этом гамильтониан системы, включающий в себя сверхтонкое взаимодействие и взаимодействие гамма-кванта с ядром, для основного и возбужденного состояний ядра будет иметь следующий вид:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + g_{g,e}\mu_N \hat{\mathbf{I}}^{(g,e)} \mathbf{H}_{hf}(t) + \hat{V}_{\gamma N}(t_0), \quad (1)$$

где  $\hat{H}_0$  — гамильтониан ядра, определяющий энергии уровней ядра в основном и возбужденном состояниях, без учета сверхтонкого взаимодействия; второй член в (1) описывает сверхтонкое взаимодействие ядра. Здесь  $\mu_N$  — ядерный магнетон,  $g_{g,e}$  — ядерный  $g$ -фактор и  $\hat{\mathbf{I}}^{(g,e)}$  — ядерный спин для основного ( $g$ ) и возбужденного ( $e$ ) состояний ядра; оператор  $\hat{V}_{\gamma N}(t_0)$  описывает взаимодействие гамма-кванта с ядром, а  $t_0$  — момент включения этого взаимодействия. При  $t < t_0$  согласно общей теории резонансного взаимодействия излучения с веществом [17]  $V(t) = 0$ . Как видно из (1), форма спектра поглощения будет определяться через зависимость  $\mathbf{H}_{hf}(t)$ .

В сильных РЧ полях каждая частица будет большую часть времени иметь направление намагниченности, практически совпадающее с направлением РЧ поля, и в предположении предельно быстрой релаксации будет мгновенно менять свое направление с изменением направления РЧ поля (см. рис. 1а). Если пренебречь перпендикулярными компонентами сверхтонкого поля, то для волновых функций ядра в основном  $\psi_m(t)$  и возбужденном  $\psi_M(t)$  состояниях имеем

$$\begin{aligned} \psi_m(t, t_0) &= \exp \left[ -ig_g \mu_N m \int_{t_0}^t H_{hf}(t') dt' \right] |m\rangle, \\ \psi_M(t, t_0) &= \exp \left[ -ig_e \mu_N M \int_{t_0}^t H_{hf}(t') dt' + \left( i \frac{E_0}{\hbar} - \frac{\Gamma_0}{2} \right) (t - t_0) \right] |M\rangle. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь  $m$  и  $M$  — проекции спина ядра на направление сверхтонкого поля в основном и возбужденном состояниях соответственно,  $E_0$  и  $\Gamma_0$  — энергия и ширина уровня возбужденного состояния ядра.

Согласно [17], для амплитуды поглощения гамма-кванта энергии  $E = \hbar\omega$  имеем

$$c_{mM}(\omega) = \int_{t_0}^{\infty} \langle \psi_M^*(t) | \hat{V}_{\gamma N}(t_0) \exp[i\omega(t - t_0)] | \psi_m(t) \rangle dt \equiv \\ \equiv V_{mM} \int_{t_0}^{\infty} \exp \left[ \int_{t_0}^t i\omega_{mM}(t') dt' + i\tilde{\omega}(t - t_0) \right] dt, \quad (3)$$

где  $\omega_{mM}(t) = (g_e M - g_g m) \mu_N H_{hf}(t)$ ,  $\tilde{\omega} = \omega + i\Gamma_0/2$ , а  $V_{mM}$  — матричные элементы оператора ядерного тока, куда включается также и вероятность эффекта Мессбауэра. Квадрат модуля амплитуды поглощения определяет сечение поглощения [17]. При этом надо еще провести усреднение по времени включения  $t_0$ . Обычно на  $t_0$  не акцентируется внимание, но в нашем случае есть зависящее от времени РЧ поле, которое определяет свой отсчет времени. С учетом периодичности РЧ поля достаточно провести усреднение в пределах одного периода. Учитывая вышесказанное, для сечения поглощения имеем

$$\sigma(\omega) = \sigma_a \sum_{\alpha} |C_{\alpha}|^2 \varphi_{\alpha}(\omega), \quad (4)$$

где

$$\varphi_{\alpha}(\omega) = \frac{1}{T_{rf}} \int_0^{T_{rf}} \left| \int_{t_0}^{\infty} \exp \left\{ \int_{t_0}^t i [\tilde{\omega} - \omega_{\alpha}(t')] dt' \right\} dt \right|^2 dt_0 \equiv \\ \equiv \frac{1}{T_{rf}} \int_0^{T_{rf}} dt_0 \int_{t_0}^{\infty} dt_1 \exp[-\Gamma_0(t_1 - t_0)] \int_{t_1}^{\infty} dt \exp \left\{ \int_{t_1}^t i [\tilde{\omega} - \omega_{\alpha}(t')] dt' \right\} + \text{c.c.} \quad (5)$$

Здесь  $\sigma_a = f_a n_a s_0 t_a$  — эффективная толщина поглотителя,  $f_a$  — вероятность эффекта Мессбауэра в поглотителе,  $n_a$  — плотность резонансных ядер в поглотителе,  $s_0$  — поперечное сечение поглощения,  $t_a$  — толщина поглотителя,  $\alpha \equiv m, M$ , коэффициенты  $C_{\alpha}$  определяют интенсивности соответствующих переходов и выражаются через коэффициенты Клебша–Гордана,  $T_{rf} = 2\pi/\omega_{rf}$  — период РЧ поля, а  $\omega_{rf}$  — его частота.

С учетом периодичности РЧ поля формула (5) преобразуется к более простому виду. Интеграл по  $t_0$  можно взять по частям, и в результате получим

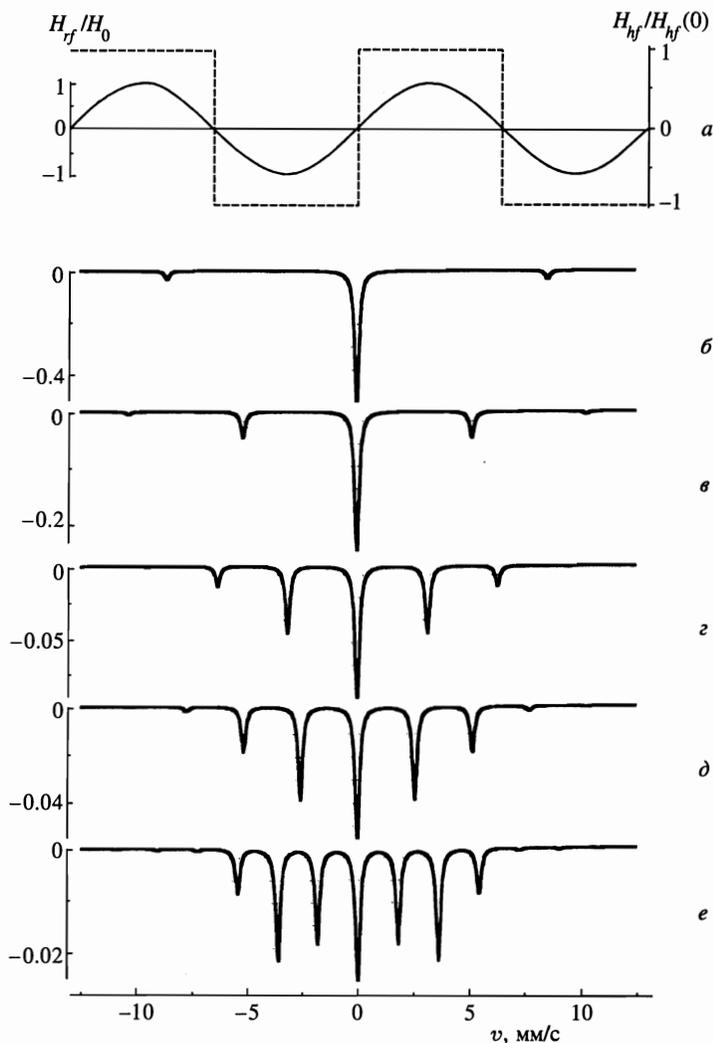
$$\varphi_{\alpha}(\omega) = \frac{1}{\Gamma_0 T_{rf}} \int_0^{T_{rf}} dt_1 \int_{t_1}^{\infty} dt \exp \left\{ \int_{t_1}^t i [\tilde{\omega} - \omega_{\alpha}(t')] dt' \right\} + \text{c.c.} \quad (6)$$

Принимая во внимание, что  $\omega_{\alpha}(t) = \omega_{\alpha}(t + T_{rf})$ , легко находим

$$\varphi_{\alpha}(\omega) = \frac{1}{\Gamma_0 T_{rf}} \int_0^{T_{rf}} dt_1 \int_{t_1}^{t_1+T_{rf}} dt \frac{\exp[i\tilde{\omega}(t - t_1)]}{1 - \exp(i\tilde{\omega}T_{rf})} \hat{G}(t_1, t_1 + T_{rf}) G(t_1, t) + \text{c.c.}, \quad (7)$$

где

$$G(t_1, t) = \exp \left\{ \int_{t_1}^t dt' (-i\omega_{\alpha}(t')) \right\}. \quad (8)$$



**Рис. 1.** *a* — Временная зависимость сверхтонкого магнитного поля (штриховая линия) в сильном РЧ поле (сплошная линия) и соответствующие мессбауэровские спектры для различных частот РЧ поля  $\omega_{rf} = 100, 50, 36.8, 30$  и  $21.1$  МГц (*б-е*). Здесь и ниже  $\omega_L = 50$  МГц

Функцию  $G(t_1, t)$  можно факторизовать, а именно, представить ее в виде

$$G(t_1, t) = G^{-1}(0, t_1)G(0, t). \tag{9}$$

В результате формула (7) приобретает более простой вид:

$$\varphi_\alpha(\omega) = \frac{1}{\Gamma_0 T_{rf}} \int_0^{T_{rf}} dt_1 \int_{t_1}^{t_1+T_{rf}} dt G^{-1}(0, t_1) \frac{\exp[i\tilde{\omega}(t - t_1)]}{1 - \exp(i\tilde{\omega}T_{rf})} \hat{G}(0, T_{rf}) G(0, t) + \text{с.с.} \tag{10}$$

Такая форма, где интегрирование проводится в конечных пределах, наиболее удобна для

выполнения конкретных расчетов в случаях произвольной периодической зависимости  $H_{hf}(t)$ .

В случае же, когда  $H_{hf}$  меняется во времени согласно рис. 1а, интеграл (10) легко берется, и в результате находим

$$\varphi_\alpha(\omega) = \frac{1}{8\Gamma_0} \left\{ \frac{1 + \exp(i\tilde{\omega}T_{rf})}{1 - \exp(i\tilde{\omega}T_{rf})} [F_\alpha(\tilde{\omega}) + F_\alpha(-\tilde{\omega})] + [F_\alpha(\tilde{\omega}) - F_\alpha(-\tilde{\omega})] \right\} + \text{с.с.}, \quad (11)$$

где

$$F_\alpha(\pm\tilde{\omega}) = G^\pm(\tilde{\omega}, \omega_\alpha) + G^\pm(\tilde{\omega}, -\omega_\alpha), \quad G^\pm(\tilde{\omega}, \omega_\alpha) = (\tilde{y}/y_\alpha + 2) f^\pm(\tilde{y} + y_\alpha),$$

$$f^+(x) = \frac{1 - \cos x}{x^2}, \quad f^-(x) = i \frac{x - \sin x}{x^2}, \quad \tilde{y} = \frac{\tilde{\omega}T_{rf}}{2}, \quad y_\alpha = \frac{\omega_\alpha T_{rf}}{2}.$$

Примеры трансформации спектров сверхтонкой структуры в зависимости от соотношения РЧ и ларморовской частот приведены на рис. 1б–е. Во всех случаях спектры состоят из одиночной центральной линии и спутников. Согласно (11) для интенсивностей спутников при  $\omega_{rf} \gg \Gamma_0$  имеем

$$I_k = 2\sigma_\alpha \sum_\alpha \left[ \frac{y_\alpha}{(\pi k)^2 - y_\alpha^2} \right]^2 [1 - (-1)^k \cos y_\alpha]. \quad (12)$$

Эти результаты полностью согласуются с результатами работ [13, 14].

### 3. МОДЕЛЬ СТОНЕРА-ВОЛЬФАРТА

Для описания процессов перемагничивания в магнитных сплавах широко используется модель, предложенная еще в 1946 г. Стонером и Вольфартом [16]. Согласно этой модели ферромагнетик рассматривается как совокупность отдельных частиц или кластеров, внутри которой действует сильное обменное взаимодействие, так что каждую частицу можно считать однородно намагниченной с намагниченностью  $M_0$ . Для простоты предполагается, что каждая частица имеет форму вытянутого эллипсоида вращения с хаотическим распределением осей в пространстве (см. рис. 2а). Как следствие несферичности частиц возникает энергия формы

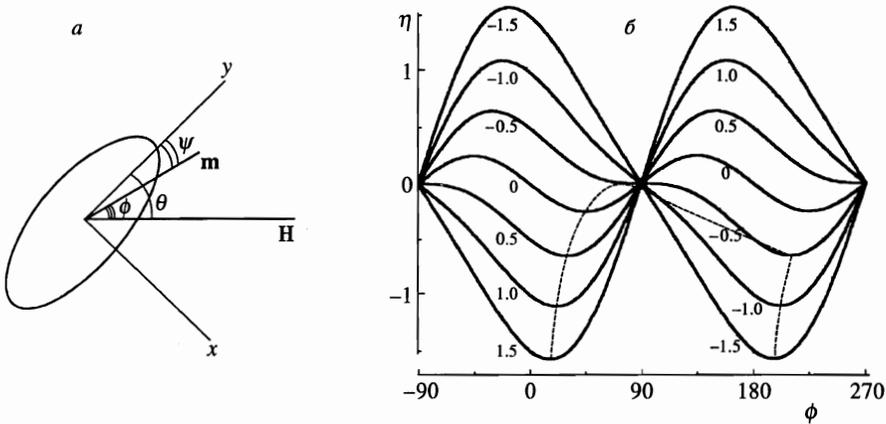
$$E_d = \frac{VM_0^2}{2} (N_y \cos^2 \psi + N_x \sin^2 \psi), \quad (13)$$

где  $V$  — объем частицы, а  $N_y$  и  $N_x$  — коэффициенты размагничивания вдоль осей  $y$  и  $x$  соответственно.

В модели СВ также предполагается, что

$$E_d \gg kT, \quad (14)$$

так что в отсутствие внешних полей магнитный момент каждой частицы занимает одно из двух положений вдоль оси легчайшего намагничивания. Перескоки между двумя



**Рис. 2.** *a* — Намагниченность  $\mathbf{m}$  частицы СВ во внешнем магнитном поле  $\mathbf{H}$ . *б* — Зависимость нормированной энергии  $\eta = E/(N_x - N_y)VM_0^2$  частицы СВ ( $\theta = 45^\circ$ ) от угла  $\phi$  для различных значений нормированного внешнего магнитного поля  $h = H/(N_x - N_y)VM_0$ ; штриховой линией показано изменение угла  $\phi$  с уменьшением  $h$  от положительного значения выше  $h_c$  до отрицательных значений

этимися состояниями считаются вследствие соотношения (14) очень медленными, так что за время измерения ими можно пренебречь.

Если на частицу действует внешнее магнитное поле  $H$ , то полный гамильтониан частицы имеет вид

$$\hat{H} = -HVM_0 \cos \phi + \frac{VM_0^2}{2} (N_y \cos^2 \psi + N_x \sin^2 \psi). \quad (15)$$

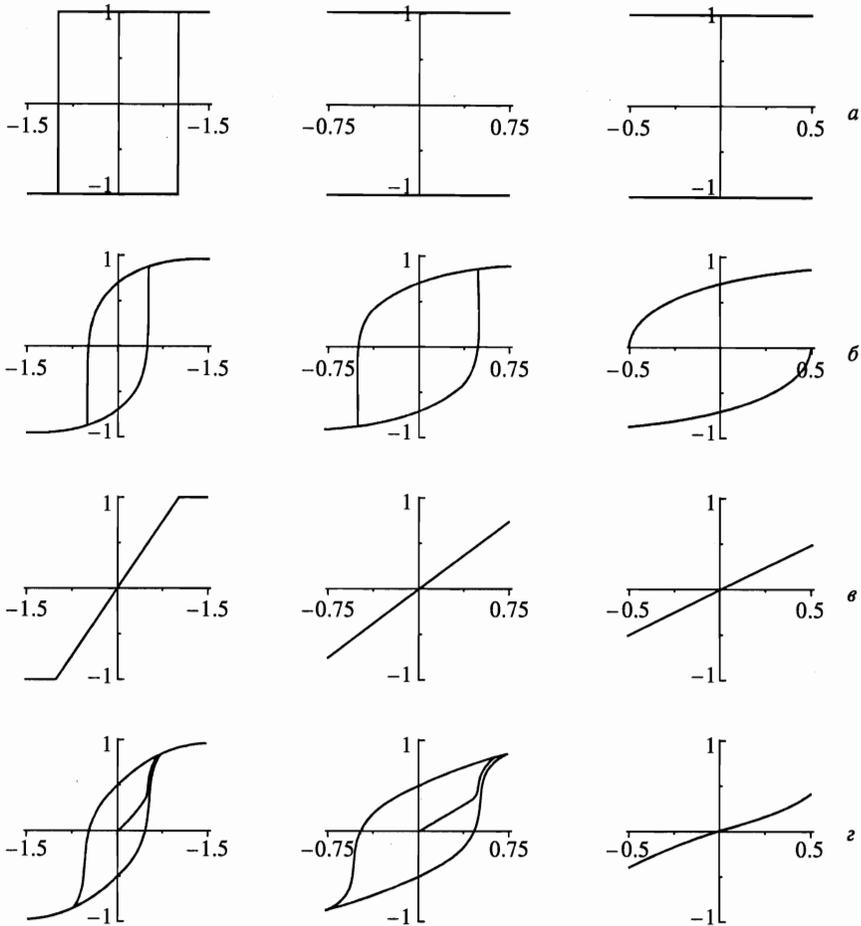
Здесь первый член описывает энергию частицы во внешнем магнитном поле. На рис. 2*б* показана серия зависимостей полной энергии частицы от направления вектора намагниченности для различных значений нормированной напряженности магнитного поля

$$h = \frac{H}{(N_x - N_y)VM_0}. \quad (16)$$

Как видно из рис. 2*б*, при наложении магнитного поля минимумы энергии по углу  $\phi$  смещаются, т. е. магнитный момент отклоняется от оси легчайшего намагничивания (см. рис. 2*а*). При этом для слабых магнитных полей  $h < h_c$  на кривой сохраняются два минимума энергии разной глубины и два максимума; а если внешнее поле превышает  $h_c$ , мы имеем кривые с одним минимумом ( $h_c$  обозначает критическую напряженность магнитного поля, зависящую от ориентации частицы [16]).

Существенным предположением модели СВ является предположение о наличии быстрых релаксационных процессов, таких что при изменении внешнего поля магнитный момент частицы отслеживает положение локального минимума и мгновенно перестраивает свое направление в соответствии с ним, и лишь при полях  $h > h_c$  магнитный момент мгновенно переходит в абсолютный минимум. Изменение направления магнитного момента при изменении  $h$  показано на рис. 2*б* штриховой линией.

Согласно описанной выше схеме рассчитывается поведение магнитного момента частицы в зависимости от внешнего магнитного поля  $H$ . Соответствующие кривые для



**Рис. 3.** Кривые намагничивания для частиц СВ с углами  $\theta = 0^\circ, 45^\circ, 90^\circ$  ( $a-\theta$ ) и для ансамбля хаотически ориентированных СВ частиц ( $г$ ) для различных амплитуд РЧ поля  $h_0 = 1.5, 0.75, 0.5$  (слева направо)

внешнего периодического поля

$$H(t) = H_0 \sin \omega t \tag{17}$$

представлены на рис. 3, где построены проекции магнитного момента на направление магнитного поля для разных групп частиц с разной ориентацией осей легчайшего намагничивания, а также общая кривая намагничивания для всех частиц, ориентированных хаотически. Как видно из этого рисунка, при полях выше  $h_c$  кривая намагничивания выходит на стационарную замкнутую кривую независимо от начального положения магнитного момента частицы при  $H = 0$ . При малых полях память о начальном состоянии сохраняется, и для каждой частицы имеются две кривые намагничивания, соответствующие разным начальным состояниям, отличающимся противоположным направлением магнитного момента. Так как критическое поле  $h_c$  зависит от ориентации оси легчайшего намагничивания частицы относительно направления магнитного поля,

при определенных амплитудах внешнего поля  $H_0$  в диапазоне  $0.5 < h_0 < 1$  (см. серию кривых на рис. 3а-в) часть частиц будет перемагничиваться в режиме сильного поля, а другая часть — в режиме слабого поля. Эти особенности процесса перемагничивания в данной модели окажутся существенными при формировании сверхтонкой структуры мессбауэровских спектров.

Отметим ту нетривиальную роль, которую играет релаксация в этой модели. С одной стороны, релаксационный процесс предполагается достаточно быстрым, чтобы магнитный момент отслеживал положение локального минимума энергии, а с другой стороны, этот процесс должен быть достаточно медленным с точки зрения перескоков между локальными минимумами. Очевидно, что оба эти условия могут быть реализованы только в том случае, если условие (14) выполняется с большим запасом, когда скорость надбарьерных переходов между локальными минимумами можно считать равной нулю с экспоненциальной точностью. Условие (14) заведомо выполняется для частиц большого объема, а с уменьшением объема частиц роль релаксационных процессов существенно меняется, и необходимо учитывать перескоки между локальными минимумами. Такое обобщение модели СВ можно сделать в рамках подхода, предложенного в работе [15].

#### 4. МЕССБАУЭРОВСКИЕ СПЕКТРЫ ДЛЯ ЧАСТИЦ СТОНЕРА-ВОЛЬФАРТА

Таким образом, в модели Стонера–Вольфарта магнитный момент частиц меняется по направлению, и учет этого обстоятельства в мессбауэровских спектрах поглощения требует специального исследования, которое существенно усложняется не только по сравнению со случаем, рассмотренным в разд. 2, но и по сравнению с более общим случаем, рассмотренным в работе [15]. В данном случае сверхтонкое взаимодействие определяется гамильтонианом (1) без каких-либо ограничений, т. е.  $\hat{H}_{hf}(t)$  может меняться по направлению произвольным образом. Так как операторы сверхтонкого взаимодействия не коммутируют в различные моменты времени, то такое простое решение, которое мы получили в разд. 2, уже не существует.

В этом случае волновые функции для основного и возбужденного состояний ищутся в форме

$$\begin{aligned} |\psi^{(g)}(t, t_0)\rangle &= c_{mm_0}(t, t_0)|m\rangle, \\ |\psi^{(e)}(t, t_0)\rangle &= \tilde{c}_{MM_0}(t, t_0)|M\rangle. \end{aligned} \quad (18)$$

Здесь  $m$ ,  $M$  и  $m_0$ ,  $M_0$  — проекции ядерного спина на некоторую выделенную ось в моменты времени  $t$  и  $t_0$  соответственно. В формулах (18) и ниже предполагается суммирование по дважды повторяющимся индексам. Из уравнения Шредингера для коэффициентов  $c_{mm_0}(t, t_0)$  и  $\tilde{c}_{M_0M}(t, t_0)$  легко находим

$$\begin{aligned} c_{mm_0}(t, t_0) &= \langle m|\tilde{T} \exp \left[ -ig_g \mu_N m \int_{t_0}^t \hat{H}_{hf}(t') dt' \right] |m_0\rangle, \\ \tilde{c}_{M_0M}(t, t_0) &= \langle M|\tilde{T} \exp \left[ -ig_e \mu_N M \int_{t_0}^t \hat{H}_{hf}(t') dt' + \left( i\frac{E_0}{\hbar} - \frac{\Gamma_0}{2} \right) (t - t_0) \right] |M_0\rangle. \end{aligned} \quad (19)$$

С учетом усреднения по начальным состояниям за период РЧ поля сечение поглощения для частиц с заданной ориентацией оси легчайшего намагничивания ( $i$ ) будет определяться следующим выражением:

$$\sigma_i(\omega) = \frac{1}{T_{rf}} \int_0^{T_{rf}} \sum_{m_0, M_0} \left| \int_{t_0}^{\infty} c_{M_0 M}^*(t, t_0) V_{M m} c_{m m_0}(t, t_0) e^{i\omega(t-t_0)} dt \right|^2 dt_0. \quad (20)$$

Для преобразования этого выражения удобно ввести лиувиллевский оператор  $\hat{L}_{\hat{H}}(t)$ , действие которого на обычный оператор  $\hat{A}(t)$  определяется соотношением [18]

$$i \frac{\partial \hat{A}(t)}{\partial t} = \hat{L}_{\hat{H}}(t) \hat{A}(t) = \frac{1}{\hbar} [\hat{H}(t), \hat{A}(t)]. \quad (21)$$

В нашем случае супероператор  $\hat{L}_{\hat{H}}(t)$  действует в пространстве  $(2I^{(g)} + 1)(2I^{(e)} + 1)$  переменных и для случая ядер  $^{57}\text{Fe}$  имеет вид матрицы восьмого ранга. С помощью этого оператора выражение (20) можно преобразовать к виду, аналогичному левой части формулы (5):

$$\begin{aligned} \sigma_i(\omega) = & \frac{1}{T_{rf}} \int_0^{T_{rf}} dt_0 \int_{t_0}^{\infty} dt_1 \exp[-\Gamma_0(t_1 - t_0)] \times \\ & \times \int_{t_1}^{\infty} \text{Sp} \left\{ \hat{V} \left[ \hat{T} \exp \left\{ \int_{t_1}^t i [\tilde{\omega} \hat{I} - \hat{L}_{\hat{H}}(t')] dt' \right\} \right] \hat{V} \right\} dt + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (22)$$

В полной аналогии с результатами разд. 2 проводится усреднение по  $t_0$ , что дает

$$\sigma_i(\omega) = \frac{1}{\Gamma_0 T_{rf}} \int_0^{T_{rf}} dt_1 \int_{t_1}^{\infty} \text{Sp} \left\{ \hat{V} \left[ \hat{T} \exp \left\{ \int_{t_1}^t i [\tilde{\omega} \hat{I} - \hat{L}_{\hat{H}}(t')] dt' \right\} \right] \hat{V} \right\} dt + \text{c.c.}, \quad (23)$$

а с учетом периодичности РЧ поля выражение (23) можно преобразовать к виду

$$\begin{aligned} \sigma_i(\omega) = & \frac{1}{\Gamma_0 T_{rf}} \sum_{\pi} \int_0^{T_{rf}} dt_1 \times \\ & \times \int_{t_1}^{t_1+T_{rf}} dt \text{Sp} \left[ \hat{V}_{\pi} \hat{G}^{-1}(0, t_1) \frac{\exp[i\tilde{\omega}(t - t_1)]}{\hat{I} - \exp(i\tilde{\omega} T_{rf})} \hat{G}(0, t) \hat{V}_{\pi} \right] + \text{c.c.}, \end{aligned} \quad (24)$$

где

$$\hat{G}(0, t) = \hat{T} \exp \left\{ \int_0^t dt' [-i \hat{L}_{\hat{H}}(t')] \right\} \quad (25)$$

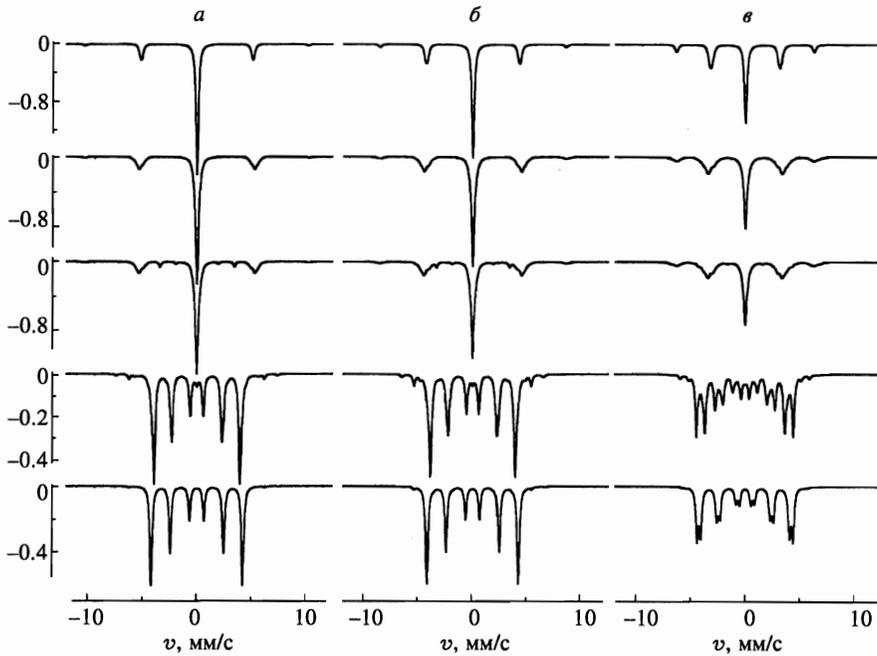


Рис. 4. Расчетные мессбауэровские спектры поглощения для ансамбля хаотически ориентированных частиц СВ в РЧ поле разной частоты  $\omega_{r,f} = 60, 50, 36.8$  МГц (*a–в*) и амплитуды  $h_0 = 5, 1, 0.75, 0.5, 0.25$  (сверху вниз)

( $\hat{T}$  — оператор хронологического упорядочения). В формуле (24) также проведено суммирование по различным поляризациям  $\pi$  падающего гамма-излучения. Полное сечение поглощения очевидно определяется усреднением по всем частицам различной ориентации.

В соответствии с определением  $\hat{T}$ -произведения оператор  $\hat{G}(0, t)$  представляется в виде

$$\hat{G}(0, t) = \lim_{n \rightarrow \infty} \prod_{k=1}^n \exp(-i\hat{L}_{\hat{H}}(t_k)\Delta t), \quad (26)$$

где  $\Delta t = t/n$  и  $t_k = t - k\Delta t$ . Если магнитная динамика системы известна, т.е.  $M_i(t)$ , а следовательно, и  $H_{h,f}^{(i)}(t)$  можно считать известными функциями (см. рис. 3), матричные элементы оператора  $\hat{G}(0, t)$  несложно численно рассчитать на компьютере по аналогии с обычными интегралами. Тем самым с помощью формул (24)–(26) можно непосредственно провести расчеты мессбауэровских спектров поглощения. Отметим, что объем расчетов резко увеличивается по сравнению с предыдущим случаем, когда поле менялось только по величине, а не по направлению. Результаты расчетов мессбауэровских спектров поглощения для различных амплитуд и частот РЧ поля представлены на рис. 4 и 5.

Как видно из рис. 4, по мере возрастания амплитуды РЧ поля хорошо разрешенная сверхтонкая структура при малых РЧ полях схлопывается при больших магнитных РЧ полях в одиночную центральную линию с сателлитами, расположенными на расстояни-

ях  $\pm n\omega_{rf}$ , где  $n$  — целое число. При понижении частоты РЧ поля интенсивность спутников увеличивается. В промежуточных полях наблюдается существенно более сложная картина трансформации спектров по сравнению со спектрами сверхтонкой структуры, рассчитанными в работе [15], где перпендикулярные компоненты сверхтонкого расщепления полагались равными нулю.

На рис. 5 представлен ряд парциальных спектров для частиц различных ориентаций с углами  $\theta = 0^\circ, 45^\circ$  и  $90^\circ$ , для которых роль перпендикулярных компонент  $\mathbf{H}_{hf}(t)$  проявляется наиболее четко. Нетрудно видеть, что спектры при  $\theta = 0^\circ$  и  $90^\circ$  качественно отличаются друг от друга, и при  $\theta = 90^\circ$  проявляется некая своеобразная сверхтонкая структура как для центральной линии, так и для спутников. Кроме того, при малых полях и частоте РЧ поля, совпадающей с частотой сверхтонкого расщепления основного состояния ядра, наблюдается расщепление отдельных компонент сверхтонкой структуры (рис. 5б, в). Эти особенности имеют место в довольно широкой области углов  $\theta$  и даже в четкой форме проявляются в интегральных спектрах (рис. 4). Эти эффекты требуют более пристального внимания и будут обсуждаться ниже.

### 5. МЕССБАУЭРОВСКИЕ СПЕКТРЫ ДЛЯ ЦИРКУЛЯРНО ПОЛЯРИЗОВАННОГО СВЕРХТОНКОГО ПОЛЯ

Нетрудно увидеть, что при  $h_0 = 1$  и  $\theta = 90^\circ$  сверхтонкое поле на ядре оказывается строго циркулярно поляризованным, т. е.

$$\mathbf{H}_{hf}(t) = \mathbf{n}_x \cos(\omega_{rf}t) + \mathbf{n}_y \sin(\omega_{rf}t). \tag{27}$$

В этом случае, как мы увидим ниже, выражение для мессбауэровского спектра поглощения имеет относительно простое аналитическое решение.

Рассмотрим волновую функцию основного состояния ядра. Для нее удобно искать решение в форме

$$|\psi^{(g)}(t)\rangle = \hat{T} \exp\left(-i \int_{t_0}^t \hat{H}^{(g)}(t') dt'\right) |\psi^{(g)}(t_0)\rangle, \tag{28}$$

где

$$\hat{H}^{(g)}(t) = \omega_g \hat{\mathbf{I}} \mathbf{H}_{hf}(t). \tag{29}$$

Здесь  $\omega_g$  — константа сверхтонкого расщепления для основного состояния. С помощью унитарного преобразования, представляющего собой переход в систему координат, вращающуюся вокруг оси  $z$  с частотой  $\omega_{rf}$ , можно получить более простое выражение для  $|\psi^{(g)}(t)\rangle$ , а именно:

$$\begin{aligned} |\psi^{(g)}(t)\rangle &= \exp(i\omega_{rf}\hat{I}_z t_0) \exp(-i\omega_{rf}\hat{I}_z t) \hat{T} \exp\left(-i \int_{t_0}^t \hat{H}^{(g)}(t') dt'\right) \times \\ &\times \exp(i\omega_{rf}\hat{I}_z t) \exp(-i\omega_{rf}\hat{I}_z t) |\psi^{(g)}(t_0)\rangle \equiv \\ &\equiv \exp(i\omega_{rf}\hat{I}_z t_0) \exp\left(-i\hat{H}^{(g)}(t-t_0)\right) \exp(-i\omega_{rf}\hat{I}_z t) |\psi^{(g)}(t_0)\rangle, \end{aligned} \tag{30}$$

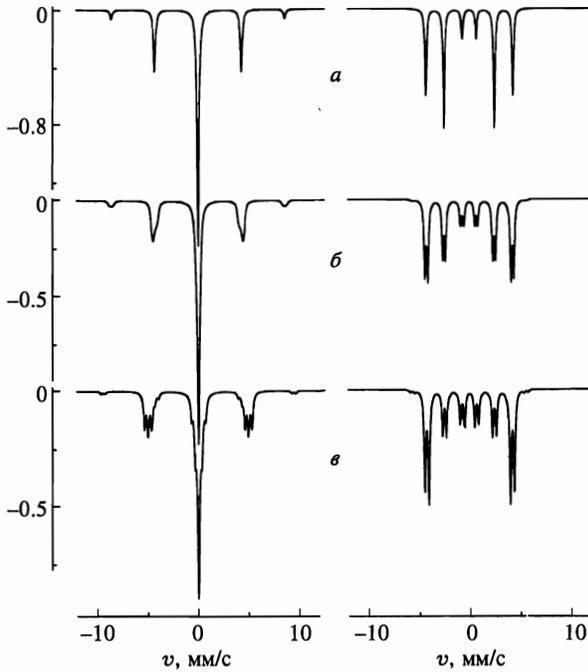


Рис. 5. Расчетные мессбауэровские спектры для частиц СВ с  $\theta = 0^\circ, 45^\circ, 90^\circ$  (а-в) в сильном РЧ поле,  $h_0 = 1$ , при  $\omega_{rf} = 50$  МГц (слева) и в слабом РЧ поле,  $h_0 = 0.25$ , на резонансной частоте  $\omega_{rf} = \omega_g = 36.8$  МГц (справа)

где

$$\hat{H}^{(g)} = \omega_{rf} \hat{I}_z + \omega_g \hat{I}_x \tag{31}$$

есть не зависящий от времени оператор.

Введем собственные функции  $|\tilde{m}\rangle$  и  $|m\rangle$ , а также собственные значения  $\omega_{\tilde{m}}$  и  $\omega_m$  для операторов  $\hat{H}^{(g)}$  и  $\omega_{rf} \hat{I}_z$ . Нетрудно увидеть, что

$$\omega_{\tilde{m}} = \sqrt{\omega_{rf}^2 + \omega_g^2} \tilde{m}, \quad \omega_m = \omega_{rf} m, \tag{32}$$

где  $m$  — проекция спина ядра на ось  $z$ , а  $\tilde{m}$  — проекция спина ядра на ось квантования, для которой оператор  $\hat{H}^{(g)}$  диагонален. Используя эти выражения, нетрудно получить для функции  $c_{mm_0}(t, t_0)$

$$c_{mm_0}(t, t_0) = \langle m_0 | \tilde{m} \rangle \langle \tilde{m} | m \rangle \exp(i(\omega_{m_0} - \omega_{\tilde{m}})t_0) \exp(i(\omega_{\tilde{m}} - \omega_m)t). \tag{33}$$

Аналогично для возбужденного состояния находим

$$c_{M M_0}(t, t_0) = \langle M_0 | \vec{M} \rangle \langle \vec{M} | M \rangle \exp(i(\omega_{M_0} - \omega_{\vec{M}})t_0) \times \exp(i(\omega_{\vec{M}} - \omega_M)t) \exp(i(E_0/\hbar + i\Gamma/2)(t - t_0)). \tag{34}$$

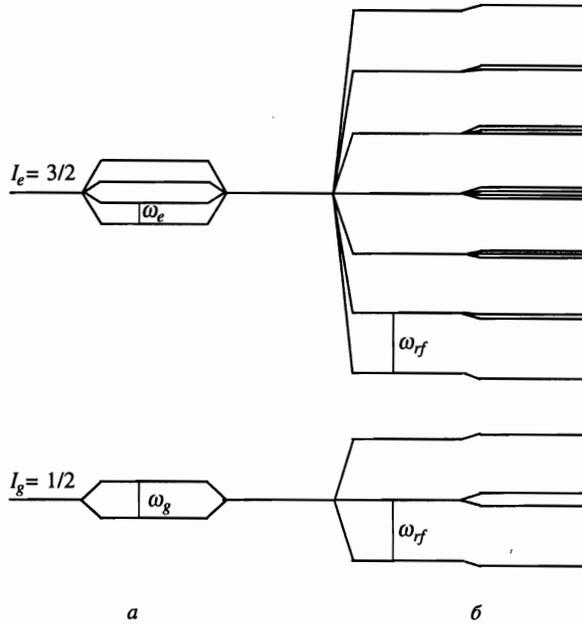


Рис. 6. Схема расщепления энергетических уровней ядра в возбужденном и основном состояниях в статическом сверхтонком поле (а) и в циркулярно поляризованном сверхтонком поле  $\mathbf{H}_{hf}(t)$  ( $\theta = 90^\circ$ ,  $h_0 = 1$ ) (б)

Как видно из формул (33) и (34), ядро со спином  $I$  ведет себя под действием внешнего циркулярно поляризованного поля подобно системе с энергетическими уровнями (квазиуровнями)

$$\omega_i = \omega_{\tilde{M}} - \omega_M. \tag{35}$$

Число этих квазиуровней оказывается равным  $(2I + 1)^2$ . Соответствующая схема расщепления энергетических уровней основного и возбужденного состояний ядра  $^{57}\text{Fe}$  показана на рис. 6. Очевидно, что эти уровни будут проявлять себя в спектрах поглощения как четкие линии с естественной шириной, что мы фактически наблюдаем на рис. 5в. Используя (33) и (34), нетрудно получить аналитические выражения для спектра поглощения, при этом удобно воспользоваться не конечным результатом (24), а формулой (23). В результате несложных преобразований находим

$$\sigma_i(\omega) = \frac{1}{\Gamma_0} \sum_{\pi} \sum_{\substack{mM \\ \tilde{m}\tilde{M}}} V_{\tilde{m}M}^{(\pi)+} \frac{\langle \tilde{m}|m\rangle \langle M|\tilde{M}\rangle}{i(\tilde{\omega} - \omega_{\tilde{M}} + \omega_{\tilde{m}} + \omega_M - \omega_m)} V_{Mm}^{(\pi)} + \text{c.c.} \tag{36}$$

Расчеты, проведенные по формуле (36) и по формулам (24)–(26), полностью совпадают.

Таким образом, в рассматриваемом случае спектр поглощения состоит из четких линий лоренцевской формы в некоторой аналогии со случаем статического сверхтонкого поля, однако с существенно большим числом линий. В общем случае для рассматриваемого перехода спектр состоит из 64 линий. Если учесть правила запрета, диктуемые мультипольностью перехода  $M1$ , то переходы с индексами  $M = \pm 3/2 \rightarrow m = \mp 1/2$

оказываются запрещенными и число разрешенных линий сокращается до 48, причем реально наблюдаются 24 двукратно вырожденные линии. Кроме того, при больших  $\omega_{rf}$  линии разбиваются на центральную группу из 6 линий и боковые группы (сателлиты) с разрешенной сверхтонкой структурой с числом линий равным 5, 3 и 1 по мере удаления от центра.

Как показывают непосредственные расчеты, описанная выше картина с более или менее выраженной сверхтонкой структурой как центральной линии, так и сателлитов сохраняется как в довольно широком интервале углов  $\theta$  вблизи  $\theta = 90^\circ$ , так и в широком диапазоне частот РЧ поля.

## 6. ПРЕДЕЛ СЛАБЫХ РЧ ПОЛЕЙ

Особый интерес представляет также случай слабых РЧ полей, так как даже при очень малых полях возникают типичные резонансные эффекты, проявляющиеся в виде расщепления линий сверхтонкой структуры (см. рис. 5б). Если амплитуда РЧ поля для каждой частицы много меньше энергии анизотропии ( $h_0 \ll 1$ ), то магнитный момент частицы, а следовательно, и  $\mathbf{H}_{hf}(t)$  совершают малые колебания около одного из двух направлений оси легчайшего намагничивания  $\mathbf{n}$ .

Если выбрать частоту РЧ поля равной  $\omega_g$  или  $\omega_e$ , то нетрудно показать, что с точностью до квадратичных по  $h_0$  членов в полной аналогии с результатами предыдущего раздела появляется система квазиуровней (см. рис. 7а), определяемая уравнениями типа (32) и (35). В случае, когда  $\omega_{rf} = \omega_e$ ,

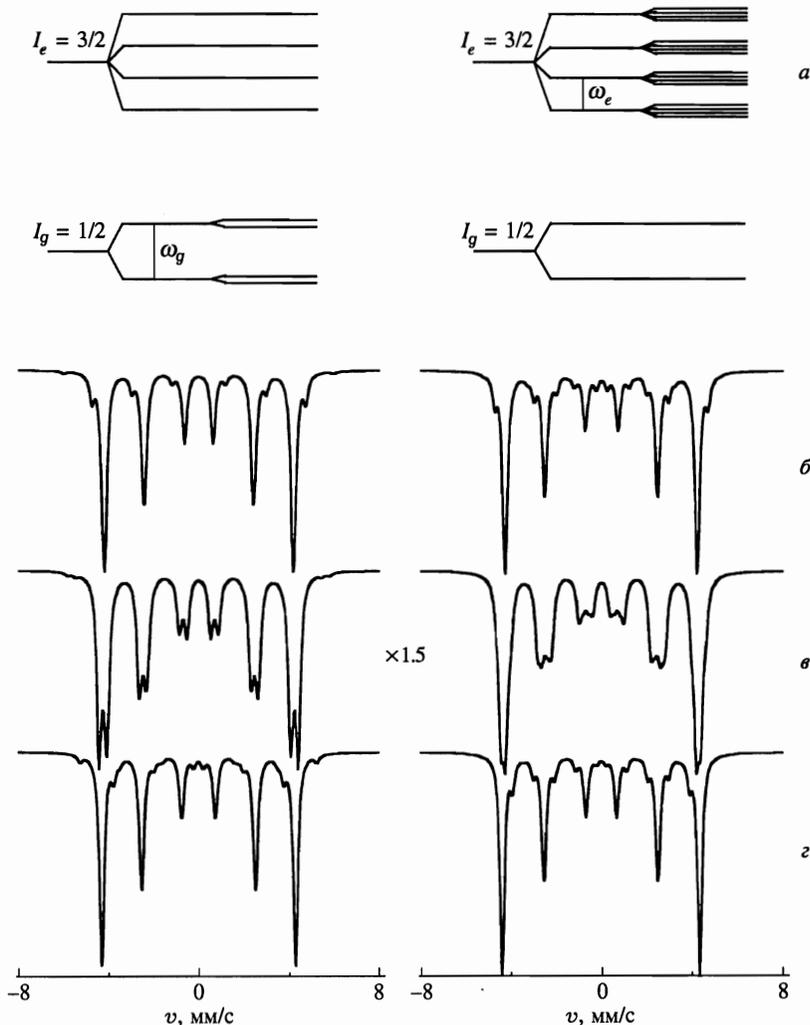
$$\begin{aligned}\omega_{\tilde{m}} &= \frac{1}{2} h_0 \omega_g \tilde{m} \sin \theta, & \omega_{\tilde{M}} &= 0, \\ \omega_m &= \omega_g m, & \omega_M &= \omega_e M.\end{aligned}\quad (37)$$

Здесь  $m$  — проекция спина ядра на ось  $\mathbf{n}$ , а  $\tilde{m}$  — проекция спина ядра на ось, перпендикулярную  $\mathbf{n}$  и лежащую в плоскости  $(\mathbf{nH})$ . Аналогично для случая, когда  $\omega_{rf} = \omega_e$ ,

$$\begin{aligned}\omega_{\tilde{m}} &= 0, & \omega_{\tilde{M}} &= \frac{1}{2} h_0 \omega_e \tilde{M} \sin \theta, \\ \omega_m &= \omega_g m, & \omega_M &= \omega_e M.\end{aligned}\quad (38)$$

При этом спектр поглощения будет описываться формулой (36), полученной в предыдущем разделе. Следует, однако, иметь в виду, что формула (36) в рассматриваемом

случае слабых полей является приближенной, так как в ней не учитываются квадратичные по амплитуде РЧ поля поправки. На рис. 7б–г представлены мессбауэровские спектры при частотах РЧ поля вблизи резонансных. Как видно из этих рисунков, расщепление линий сверхтонкой структуры пропадает как при увеличении, так и при уменьшении частоты РЧ поля относительно резонансной. Отметим также, что следы этого расщепления сохраняются при достаточно большом удалении от резонансных частот, т. е. при  $\Delta\omega_{rf}$ , значительно превышающих естественную ширину  $\Gamma_0$ . Такие расщепления линий должны наблюдаться не только при  $\theta = 90^\circ$ , но и при меньших углах, для которых величина расщепления уменьшается пропорционально  $\sin \theta$ . И, как следствие, эти расщепления сохраняются в интегральном спектре, просуммированном по всем возможным ориентациям оси легчайшего намагничивания (см. рис. 5).



**Рис. 7.** *a* — Схема расщепления энергетических уровней ядра в возбужденном и основном состояниях в слабом РЧ поле ( $h_0 = 0.25$ ) на резонансных частотах  $\omega_{rf} = \omega_g = 36.8$  МГц (слева) и  $\omega_{rf} = \omega_e = 21.1$  МГц (справа). Соответствующие мессбауэровские спектры для ансамбля хаотически ориентированных частиц СВ в РЧ поле с частотой вблизи резонансных частот ( $\Delta\omega = = 5$  МГц):  $\omega_{rf} = \omega_{g,e} + \Delta\omega, \omega_{g,e}, \omega_{g,e} - \Delta\omega$  (*б-г*). Масштаб спектров (*б*) увеличен в 1.5 раза

### 7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Развитая выше теория позволяет рассчитать мессбауэровские спектры поглощения в случае, когда сверхтонкое поле на ядре меняет произвольным образом свое направление. Проведены конкретные расчеты и анализ трансформации спектров сверхтонкой структуры в зависимости от частот и амплитуд РЧ поля для модели Стонера–Вольфарта в строгом соответствии с постулатами этой модели, которые были сформулированы в исходной работе [16]. При этом обнаружен ряд качественно новых эффектов в спектрах

сверхтонкой структуры, предсказываемых данной моделью, которые полностью отсутствуют, если процесс перемагничивания происходит как резкое изменение направления оси легчайшего намагничивания на обратное [15]. Для понимания особенностей наблюдаемых эффектов оказалось существенным рассмотрение случая циркулярно поляризованного сверхтонкого поля, для которого было получено аналитическое решение. Спектр сверхтонкой структуры в этом случае состоит из линий лоренцевской формы естественной ширины, число которых, однако, значительно превышает число линий сверхтонкой структуры в статическом сверхтонком поле.

Следует иметь в виду, что модель Стонера–Вольфарта может оказаться неадекватной для описания процесса перемагничивания в реальных ситуациях, и в первую очередь за счет того, что в ней не учитывается взаимодействие между частицами, а также очень приближенно описан релаксационный процесс. Эти вопросы требуют особого рассмотрения.

## Литература

1. L. Pfeiffer, J. Appl. Phys. **42**, 1725 (1971).
2. L. Pfeiffer, in *Mössbauer Effect Methodology*, ed. by I. J. Gruverman, Plenum Press, N. Y. (1972), vol. 7, p. 263.
3. G. Albanese and G. Asti, Nuovo Cimento B **6**, 153 (1971).
4. M. Kopcewicz, J. de Phys. Coll. C **6**, C6-107 (1976).
5. M. Kopcewicz, Phys. Status Sol. A **46**, 675 (1978).
6. M. Kopcewicz and A. Kotlicki, J. Phys. Chem. Solids **41**, 631 (1980).
7. M. Kopcewicz, U. Gonser, and H.-G. Wagner, Nucl. Instrum. Methods **199**, 163 (1982).
8. M. Kopcewicz, Struct. Cem. **2**, 313 (1991).
9. T. Graf, M. Kopcewicz, and J. Hesse, Nanostructured Materials **6**, 937 (1995).
10. M. Kopcewicz, A. Grabias, and P. Nowicki, NanoStructured Materials **6**, 957 (1995).
11. T. Graf, M. Kopcewicz, and J. Hesse, J. Phys.: Condens. Matter **8**, 3897 (1996).
12. S. Olariu, I. Popescu, and C. B. Collins, Phys. Rev. C **23**, 50, 1007 (1981).
13. S. R. Julian and J. M. Daniels, Phys. Rev. B **38**, 4394 (1988).
14. A. Yu. Dzyublik, Phys. Stat. Sol. (b) **194**, 699 (1996).
15. A. M. Afanas'ev, M. A. Chuev, and J. Hesse, Phys. Rev. B **56**, 5489 (1997).
16. E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, Phil. Trans. Royal Soc. London A **240**, 599 (1948).
17. W. Heitler, *Quantum Theory of Radiation*, Clarendon Press, Oxford (1954).
18. R. Zwanzig, Physica **30**, 1109 (1964).