

# ДИНАМИКА И УСТОЙЧИВОСТЬ ЛИНЕЙНОГО КЛАСТЕРА СФЕРИЧЕСКИХ МАГНИТНЫХ НАНОЧАСТИЦ

C. A. Дзян<sup>a</sup>, Б. А. Иванов<sup>a,b\*</sup>

<sup>a</sup> Киевский Национальный университет им. Тараса Шевченко  
03127, Киев, Украина

<sup>b</sup> Институт магнетизма Национальной академии наук Украины  
03142, Киев, Украина

Поступила в редакцию 20 мая 2012 г.

Свободно перемещающиеся в жидкости магнитные частицы могут организовываться в плотные фазы, объемные кластеры или линейные цепочки. Теоретически исследована динамика частиц, составляющих цепочку, с учетом как магнитного дипольного взаимодействия, так и молекулярного взаимодействия Ван дер Ваальса. Спектр колебаний состоит из двух ветвей — магнитной, обусловленной поворотом магнитного момента частицы, и упругой, связанной со смещением частиц. В практически интересном случае частиц с постоянной плотностью массы и магнитного момента эти две моды фактически независимы, т. е. эффекты гибридизации мод слабые; но эти эффекты могут проявиться для полых частиц. Путем анализа спектра колебаний установлен критерий устойчивости цепочки относительно их перехода в более плотную фазу.

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Основным взаимодействием в физике магнетизма является обменное взаимодействие, которое обладает высокой симметрией и формирует достаточно простые типы магнитного порядка [1–3]. Однако в течение многих десятилетий не ослабевало внимание к дипольным магнетикам, т. е. к таким спиновым системам, в которых превалирует дальнодействующее магнитное дипольное взаимодействие. Дипольные магнетики представляют интерес как объекты фундаментальной физики магнетизма, обладающие рядом необычных свойств. Здесь можно отметить наличие неоднозначного основного состояния с нетривиальным вырождением даже для простых решеток типа кубических [4, 5] или двумерных квадратных [6–8] и существование специфических индуцированных внешним магнитным полем фазовых переходов [9–11]. Магнитные спектры в этих системах имеют неаналитическое поведение при малых волновых векторах [12–18], что может приводить к нарушению теоремы Мермина–Вагнера и к появлению истинного дальнего порядка даже в чисто двумерном случае при конечных температурах [16–18].

В последние годы интерес к системам с преобразованием магнитного дипольного взаимодействия существенно вырос. Прежде всего, это связано с анализом таких искусственных магнитных материалов, как массивы магнитных наночастиц [19–23]. Более традиционная проблема, касающаяся поведения малых магнитных частиц в жидкости [24], в последние годы также приобрела особую актуальность. Дело в том, что вопрос об упорядочении свободно перемещающихся магнитных частиц не только важен с точки зрения стандартной физики ферроэмульсий, но также представляет интерес для анализа процессов самоорганизации с образованием упорядоченных кластеров таких частиц, что можно рассматривать как простой и дешевый путь формированияnanostructured магнетиков [25–29], в том числе для биолого-медицинских применений [30]. В частности, микрокапли ферроэмульсии активно исследуются как основа для создания одно- и двумерных периодических структур с периодом в микронном диапазоне [27, 28]. Упорядоченные массивы магнитных элементов с субмикронными размерами обсуждаются как материалы для так называемой магноники, новой области прикладной физики магнетизма, в которой магнитные мо-

\*E-mail: bivanov@i.com.ua

ды с дискретным спектром в магнитных наноэлементах используются для устройств обработки сигналов СВЧ-диапазона [23]. Цепочечные структуры магнитных частиц были предложены для реализации цифровых операций обработки информации [31]. Все это позволяет утверждать, что анализ статических и динамических свойств упорядоченных систем магнитных наночастиц с магнитным дипольным взаимодействием представляет интерес для фундаментальной физики магнетизма и ее приложений.

В настоящее время установлено, что основное состояние системы магнитных частиц, свободно перемещающихся в жидкости, при наличии дипольного взаимодействия может включать достаточно сложные структуры с большой плотностью частиц, см., например, работы [32–42]. Среди этих структур есть и трехмерные, и цепочечные (одномерные), а также и промежуточные случаи, когда цепочечный кластер формируется из микрокластеров, составленных из наночастиц и имеющих почти сферическую форму [35–39]. Прямое наблюдение одиночных цепочек частиц размером 10–20 нм оптическими методами невозможно, но их существование надежно установлено методами электронной микроскопии замороженных образцов феррожидкости [40, 43]. Естественным образом возникает задача о поведении таких цепочек, в частности, об устойчивости цепочки. Характер возмущений, ведущих к неустойчивости, заведомо не очевиден, но может быть найден из анализа спектров малых колебаний в этой системе. Для периодического основного состояния частота колебаний  $\omega$  определяется квазимпульсом  $q$ , значения которого лежат в зоне Бриллюэна,  $\omega = \omega(q)$ . Если при некоторых значениях параметров величина  $\omega^2$  становится отрицательной при каком-то значении  $q \approx q_0$ , то имеет место неустойчивость, причем величина  $q_0$  определяет характер неустойчивости. Насколько нам известно, динамика линейных кластеров частиц с дипольной связью практически не исследована; см., однако, работу [44], в которой изучены тепловые флуктуации частиц в цепочке.

В данной работе исследована коллективная динамика магнитных наночастиц, способных свободно двигаться в жидкости, для случая, когда частицы организованы в цепочку (линейный кластер). Исследованы спектры малых колебаний такой структуры с учетом как колебаний магнитных моментов частиц, обусловленных поворотами частиц, так и смещений частиц из положения равновесия. Анализ проведен с учетом как магнитного дипольного взаимодействия, так и изотропного молекулярного взаимодействия Ван дер Ваальса. Сформулирован крите-

рий устойчивости такого линейного кластера относительно малых возмущений с произвольным пространственным профилем. Показано, что, несмотря на то, что в слабом магнитном поле состояние плотного кластера частиц более выгодно, чем цепочечное состояние [42], цепочка устойчива относительно произвольных малых возмущений даже при относительно сильном локальном молекулярном взаимодействии.

## 2. МОДЕЛЬ И ОПИСАНИЕ ДИНАМИЧЕСКИХ ПЕРЕМЕННЫХ

Для описания системы примем, что частицы находятся в однодоменном состоянии и имеют сферическую форму и одинаковые размеры (диаметр частицы  $a$  порядка нескольких десятков нанометров). Будем также считать, что энергия магнитной анизотропии достаточно велика и магнитный момент частицы может поворачиваться только вместе с поворотом частицы; выход за рамки этого приближения будет обсужден ниже в разд. 4. В рамках такой модели состояние  $i$ -й частицы описывается ее радиус-вектором  $\mathbf{r}_i$  и магнитным моментом  $\boldsymbol{\mu}_i$  постоянной длины,  $|\boldsymbol{\mu}_i| = \mu_0$ .

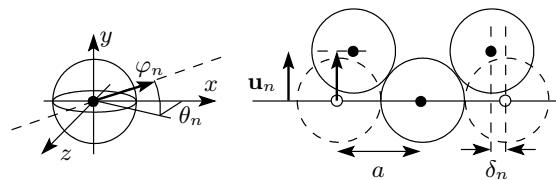
Выражение для полной энергии системы частиц  $W = W(\mathbf{r}_i, \boldsymbol{\mu}_i) = W_{dd} + W_{WdW} + W_H$  включает энергию магнитного дипольного взаимодействия частиц  $W_{dd}$ , энергию взаимодействия Ван дер Ваальса  $W_{WdW}$  и зеemanовскую энергию  $W_H$ , описывающую взаимодействие магнитного момента частицы с внешним магнитным полем  $\mathbf{H} = H\mathbf{e}_x$ ,

$$\begin{aligned} W_{dd} &= \frac{\mu_0^2}{2} \sum_{j \neq i} \frac{\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j - 3(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{n}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{n}_{ij})}{r_{ij}^3}, \\ W_{WdW} &= -\frac{\kappa}{2} \sum_{j \neq i} \frac{1}{r_{ij}^6}, \quad W_H = -\mu_0 \sum_i \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{H}, \end{aligned} \quad (1)$$

где  $r_{ij} = |\mathbf{r}_{ij}|$ ,  $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i$ ,  $\mathbf{n}_{ij} = \mathbf{r}_{ij}/r_{ij}$ , единичный вектор  $\mathbf{m}_i = \boldsymbol{\mu}_i/\mu_0$  определяет направление магнитного момента  $i$ -й частицы, в первых двух слагаемых суммирование распространяется по всем парам различных частиц, константа  $\kappa$  определяет интенсивность взаимодействия Ван дер Ваальса, которое убывает с расстоянием как  $r^{-6}$ . Здесь для упрощения задачи взаимодействие протяженных магнитных частиц заменено взаимодействием точечных диполей, расположенных в центре частицы. Это упрощение не влияет на основные особенности задачи; как правило, учет следующих поправок, пропорциональных  $r^{-5}$ , не приводит к существенным изменениям результатов [13].

Как уже отмечалось, в магнитном поле свободно перемещающимся магнитным частицам выгодно выстраиваться вдоль поля, формируя при этом кластер в виде цепочки частиц с магнитными моментами, параллельными осями цепочки. Далее будем рассматривать основное состояние системы в виде такой цепочки и исследуем динамику этого состояния, для простоты ограничившись случаем бесконечной цепочки. Выберем ось  $x$  в направлении цепочки. Частицы в цепочке будем классифицировать целым числом  $n$ , в равновесии положение  $n$ -й частицы  $\mathbf{r}_n^{(0)} = (an, 0, 0)$ , где величина  $a$  — диаметр частицы,  $a$  также определяет период цепочки. Динамика такой системы естественно включает как смещения положений центров частиц от их положения равновесия в цепочке, так и повороты частиц и связанные с ними колебания магнитных моментов. Как будет показано ниже, эти два типа колебаний, как правило, достаточно сильно разнесены по частоте, в силу чего полезно начать с их независимого рассмотрения, и лишь потом учсть их гибридизацию («перепутывание» ветвей). Таким образом, в системе можно выделить звуковые колебания, отвечающие колебаниям центров частиц при неизменных направлениях магнитных моментов, и магнитные колебания, в которых имеют место повороты магнитных моментов (вместе с поворотом соответствующей частицы) при неизменном положении центров частиц. В принципе это отвечает обычной картине элементарных возбуждений в магнитоупорядоченном кристалле, в котором есть ветви звуковых и магнитных элементарных возбуждений, фононов и магнонов, взаимодействие которых мало вне узкой области магнитоакустического резонанса [1]. Однако в данной системе имеются особенности, отсутствующие как в стандартной динамике атомных решеток, так и для обычной картины спиновых колебаний. Обсудим эти особенности подробнее.

В модели жестких сферических притягивающихся частиц расстояние между ближайшими частицами,  $r_{n,n\pm 1} = |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_{n\pm 1}| = a$  должно оставаться неизменным, т. е. звуковые колебания сводятся к изгибам цепочки, см. рис. 1. Понятно, что вклад взаимодействия Ван дер Ваальса ближайших частиц (как и вклад любого взаимодействия, зависящего только от расстояния между частицами) не проявляется в динамических свойствах таких возмущений. Таким образом, несмотря на локальный (близкодействующий) характер взаимодействия Ван дер Ваальса, его вклад надо учитывать вне рамок приближения взаимодействия ближайших соседей. Для дипольного взаимодействия вклад взаимодействия ближайших



**Рис. 1.** Переменные, используемые для описания малых колебаний в цепочке магнитных частиц; слева — определение координатных осей и переменных  $\theta_n$  и  $\varphi_n$ , описывающих направление магнитного момента частицы (жирная стрелка), совпадающее с легкой осью частицы (тонкая штриховая линия); справа — определение координат (безразмерных)  $u_n$  и  $\delta_n$ , описывающих поперечные и продольные смещения частиц в цепочке

частиц не равен нулю, но в силу медленного убывания этого взаимодействия с расстоянием также необходим учет взаимодействия всех частиц. Таким образом, в данной задаче неприменимо стандартное приближение ближайших соседей, которое часто используется в теории решеточных систем.

В линейном приближении положение  $n$ -й частицы в пространстве естественно описывать двумерным вектором поперечного смещения из положения равновесия, который перпендикулярен оси цепочки,  $\mathbf{u}_n = (0, u_{n,y}, u_{n,y})$ . Переменные  $\mathbf{u}_n$  имеют первый порядок малости в рамках линейной задачи. В таком случае условие  $r_{n,n+1} = a$  приводит к связи типа

$$(\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_{n\pm 1})^2/a^2 = (1 + \delta_n - \delta_{n\pm 1})^2 + \\ + (\mathbf{u}_n - \mathbf{u}_{n\pm 1})^2 = 1, \quad (2)$$

где безразмерные переменные  $\mathbf{u}_n$  и  $\delta_n$  определяют поперечное и продольное смещения, соответственно,  $n$ -й частицы в единицах  $a$ . В силу этого условия продольные смещения соседних частиц определяются поперечными. Поскольку все взаимодействия в системе нужно учитывать вне рамок приближения ближайших соседей, и в задаче возникают слагаемые типа  $\delta_n - \delta_{n\pm \Delta}$  с  $\Delta > 1$ , при переходе к переменным  $\mathbf{u}_n$  в задаче возникают достаточно сложные нелокальные гамильтонианы.

Сделав это общее замечание, перейдем к описанию коллективных мод колебаний системы. Ограничимся анализом линейной модели и начнем с независимого рассмотрения звуковых и магнитных колебаний.

### 3. ЗВУКОВЫЕ КОЛЕБАНИЯ

Начнем с рассмотрения звуковых колебаний, которым отвечают смещения частиц цепочки из положения равновесия без изменения направления их магнитных моментов. Считая, что все моменты параллельны друг другу и оси цепочки,  $\mu_n = \mu_0 \mathbf{e}_x$ , представим общую формулу для энергии нашей модели в следующем виде:

$$W = \frac{\mu_0^2}{2a^2} \sum_{n \neq k} \left[ \frac{\alpha_{nk}^2 - 3\alpha_{nkx}^2}{\alpha_{nk}^5} - \frac{\sigma}{\alpha_{nk}^6} \right], \quad (3)$$

где  $\alpha_{nk} = \mathbf{r}_{nk}/a$ ,  $\alpha_{nk} = |\alpha_{nk}|$  — безразмерная переменная, определяющая взаимное расположение  $k$ -й и  $n$ -й частицы, безразмерный параметр  $\sigma = \kappa/\mu_0^2 a^3$  определяет относительную интенсивность энергии взаимодействия Ван дер Ваальса и энергии магнитного дипольного взаимодействия,  $\mu_0$  и  $a$  — соответственно магнитный момент и диаметр частицы. Магнитное поле не дает вклада в свойства этих колебаний, и вклад зеемановской энергии в формуле (1) отсутствует. Далее в квадратичном по амплитуде попечерчного смещения приближении можно представить

$$\alpha_{nk} = \left[ |n-k| + \frac{n-k}{|n-k|} (\delta_n - \delta_k) + \frac{(\mathbf{u}_n - \mathbf{u}_k)^2}{2|n-k|} \right]. \quad (4)$$

В этом приближении функцию Лагранжа для звуковых колебаний можно представить в виде суммы  $L_s = \sum_n L_{s,n}$ , где

$$\begin{aligned} L_{s,n} = & \frac{1}{2} m a^2 \left( \frac{d\mathbf{u}_n}{dt} \right)^2 - \frac{3\mu_0^2}{a^3} \times \\ & \times [(\delta_{n+1} - \delta_{n-1}) + (\mathbf{u}_n - \mathbf{u}_{n+1})^2 + (\mathbf{u}_n - \mathbf{u}_{n-1})^2] - \\ & - \frac{3\mu_0^2}{a^3} \sum_{\Delta=2}^{\infty} \left( \frac{1}{\Delta^4} + \frac{\sigma}{\Delta^7} \right) (\delta_{n+\Delta} - \delta_{n-\Delta}) - \\ & - \frac{3\mu_0^2}{a^3} \sum_{\Delta=2}^{\infty} \left( \frac{1}{\Delta^5} + \frac{\sigma}{2\Delta^8} \right) \times \\ & \times [(\mathbf{u}_n - \mathbf{u}_{n+\Delta})^2 + (\mathbf{u}_n - \mathbf{u}_{n-\Delta})^2], \quad (5) \end{aligned}$$

в первой строке выделен вклад взаимодействия только ближайших соседей,  $m$  — масса частицы, переменные  $\delta_n$  связаны с  $\mathbf{u}_n$ , см. формулу (2). Для записи уравнений движения для независимых переменных  $\mathbf{u}_n$  нужно найти величины  $\partial(\delta_{n+\Delta} - \delta_{n-\Delta})/\partial\mathbf{u}_n$ . Чтобы это сделать, используем условие  $(\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_{n\pm 1})^2 = a^2$ . В линейном приближении (с учетом лишь членов второго порядка по  $\mathbf{u}_n$ ) это условие дает

$$\delta_{n\pm 1} - \delta_n \approx \mp(\mathbf{u}_n - \mathbf{u}_{n\pm 1})^2/2$$

(см. формулу (2)), т. е. смещение  $n$ -й частицы  $\mathbf{u}_n$  содержится только в величинах  $\delta_n - \delta_{n+1}$  и  $\delta_n - \delta_{n-1}$ . Далее, представив  $\delta_{n+\Delta} - \delta_{n-\Delta}$  в виде суммы величин  $\delta_{n+\Delta} - \delta_{n+\Delta-1}$ ,  $\delta_{n+\Delta-1} - \delta_{n+\Delta-2}$ , ...,  $\delta_{n+1} - \delta_n$ ,  $\delta_n - \delta_{n-1}$  и замечая, что  $\mathbf{u}_n$  входит только в разности  $\delta_{n+1} - \delta_n$  и  $\delta_n - \delta_{n-1}$ , искомое соотношение легко представить в виде

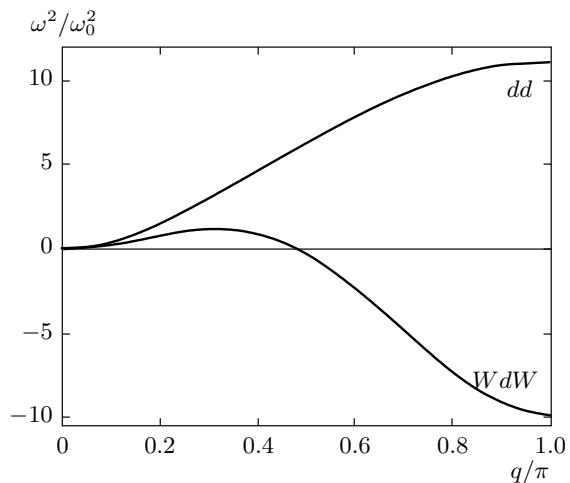
$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \mathbf{u}_n} (\delta_{n+\Delta} - \delta_{n-\Delta}) &= \frac{\partial}{\partial \mathbf{u}_n} (\delta_{n+1} - \delta_{n-1}) = \\ &= -(2\mathbf{u}_n - \mathbf{u}_{n+1} - \mathbf{u}_{n-1}). \end{aligned}$$

Таким образом, все слагаемые типа  $\delta_{n\pm\Delta}$  дают одинаковый вклад в уравнение движения для  $\mathbf{u}_n$ , что является явной демонстрацией указанной выше нелокальности задачи и повышает роль взаимодействия последующих соседей. Далее легко выписать уравнения движения, соответствующие формуле (5), только через поперечные смещения  $\mathbf{u}_n$  в следующем виде:

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \mathbf{u}_n}{dt^2} + 6\omega_0^2 \left\{ \left( \mathbf{u}_n - \frac{\mathbf{u}_{n+1} + \mathbf{u}_{n-1}}{2} \right) \times \right. \\ \left. \times \left[ 1 - \sum_{\Delta=2}^{\infty} \left( \frac{1}{\Delta^4} + \frac{\sigma}{\Delta^7} \right) \right] + \right. \\ \left. + \sum_{\Delta=2}^{\infty} \left( \frac{2}{\Delta^5} + \frac{\sigma}{\Delta^8} \right) \left( \mathbf{u}_n - \frac{\mathbf{u}_{n+\Delta} + \mathbf{u}_{n-\Delta}}{2} \right) \right\} = 0, \quad (6) \end{aligned}$$

где введено обозначение для характерной частоты  $\omega_0$ ,  $\omega_0^2 = \mu_0^2/ma^5$  (конкретные оценки этой частоты будут приведены в заключительном разделе работы). Легко видеть, что смещения входят в уравнения только в «трансляционно-ковариантных» комбинациях  $2\mathbf{u}_n - \mathbf{u}_{n+\Delta} - \mathbf{u}_{n-\Delta}$  и решение можно искать в виде блоховской волны,  $\mathbf{u}_n = \mathbf{u}_q^{(0)} \exp[i(\omega t - qn)]$ . Здесь величина  $q/a$  имеет смысл квазимпульса, который определен в пределах зоны Бриллюэна,  $|q| \leq \pi$ , частота волны  $\omega = \omega_s(q)$ . Диполь-дипольное взаимодействие и взаимодействие Ван дер Ваальса вносят аддитивный вклад в квадрат частоты звуковых колебаний, т. е.  $\omega_s^2 = \omega_{dd}^2 + \omega_{WdW}^2 = \omega_0^2 \varepsilon_s^2$ ,  $\varepsilon_s^2 = \varepsilon_{dd}^2 + \sigma \varepsilon_{WdW}^2$ , где введены безразмерные величины  $\varepsilon_{dd}^2$  и  $\varepsilon_{WdW}^2$ . Парциальные вклады взаимодействий,  $\varepsilon_{dd}^2 = \omega_{dd}^2/\omega_0^2$  и  $\sigma \varepsilon_{WdW}^2 = \omega_{WdW}^2/\omega_0^2$ , можно записать в следующем виде:

$$\varepsilon_{dd}^2 = 12 \sum_{\Delta=1}^{\infty} \frac{2 \sin^2(q\Delta/2) - \Delta \sin^2(q/2)}{\Delta^5}, \quad (7)$$



**Рис. 2.** Зависимость  $\omega^2(q)/\omega_0^2$  в звуковой ветке спектра для цепочки при учете только магнитного диполь-дипольного взаимодействия (*dd*) или только взаимодействия Ван дер Ваальса (*WdW*), при построении последнего выбрано значение  $\sigma = 100$

$$\varepsilon_{WdW}^2 = 12 \sum_{\Delta=2}^{\infty} \frac{\sin^2(q\Delta/2) - \Delta \sin^2(q/2)}{\Delta^8}. \quad (8)$$

Отметим, что вторые слагаемые в обеих суммах, пропорциональные  $\sin^2(q/2)$  для любого  $\Delta$ , появляются в формулах (7), (8) за счет учета продольных смещений частиц из положения равновесия при деформации цепочки. Эти слагаемые отрицательны, т. е. их присутствие уменьшает частоту колебаний и оказывает дестабилизирующее действие на цепочку. Вклад этих слагаемых сравним с прямым вкладом поперечных смещений, и их соотношение определяет спектр колебаний.

Функции  $\varepsilon^2(q)$  для обоих вкладов легко найти численно с высокой точностью с помощью программного пакета «mathematica», их вид представлен на рис. 2.

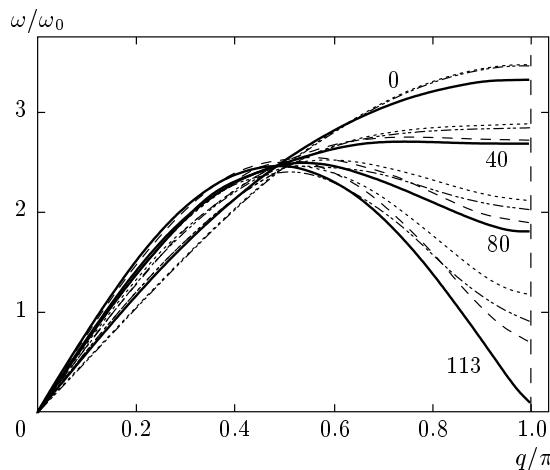
Расчет показал, что для диполь-дипольного взаимодействия  $\varepsilon_{dd}^2 > 0$  при любых  $q$ , и  $\varepsilon_{dd}^2$  является монотонно растущей функцией  $|q|$  во всей зоне Бриллюэна, см. рис. 2. Ее предельное значение на границе зоны Бриллюэна  $q = \pi$  можно записать через значения  $\zeta$ -функции Римана от целого аргумента как  $\varepsilon_{dd}^2(q = \pi) = 93\zeta(5)/4 - 2\pi^4/15 \approx 11.1207$ . Характер вклада сил Ван дер Ваальса принципиально иной; функция  $\varepsilon_{WdW}^2(q)$  растет только при  $|q| < 0.32\pi$ , имеет максимум при  $|q| \approx 0.32\pi$ , далее убывает с ростом  $q$  и является отрицательной при  $0.483\pi < |q| \leq \pi$ , см. рис. 2. Ее предельное значение при  $q = \pi$  отрицательно,  $\varepsilon_{WdW}^2(q = \pi) =$

$= 17(\pi/2)^8/1260 - 12\zeta(7) \approx -0.09833$ , максимальное значение при  $q = 0.32\pi$  равно 0.0121472. Поэтому характер полного спектра существенно зависит от значения  $\sigma$ . В частности, при значениях  $\sigma > \sigma^* \approx \approx 30$  монотонная зависимость  $\varepsilon_s^2(q)$  от  $q$  сменяется на немонотонную.

Отметим малость значений функции  $\varepsilon_{WdW}^2$  по сравнению с  $\varepsilon_{dd}^2(q = \pi)$ , что формально обусловлено тем, что числитель в формуле (8) обращается в нуль при  $\Delta = 1$  и два слагаемых в (8) при  $\Delta > 1$  почти компенсируют друг друга. Физически, малая величина вклада сил Ван дер Ваальса связана с тем, что эти силы убывают с расстоянием значительно быстрее, чем дипольные, но при этом для них отсутствует также и вклад взаимодействия ближайших соседей (при  $\Delta = 1$ ). Поэтому значения характерной безразмерной функции  $\varepsilon_{WdW}$  относительно малы, и для ее представления на рисунке мы выбрали значение  $\sigma = 100$ . В силу указанной выше малости величины все характерные значения  $\sigma$ , в частности, введенное выше характерное значение  $\sigma^* \approx 30$  и величина  $\sigma_c = 113$ , определяющая нестабильность цепочки, см. ниже.

Полученный спектр, в частности, определяет устойчивость цепочки относительно малых возмущений с любыми  $q$ . При учете только дипольного взаимодействия ( $\sigma = 0$ ) цепочка устойчива, а при учете только сил Ван дер Ваальса цепочка неустойчива относительно коротковолновых возмущений с  $q \approx \pi$ . Понятно, что при наличии обоих типов возмущений существует критическое значение отношения интенсивностей этих взаимодействий, параметра  $\sigma$ , что при  $\sigma < \sigma_c$  имеем  $\omega_s^2 > 0$  и цепочка устойчива, а при  $\sigma > \sigma_c$  устойчивость цепочки нарушается для  $q \approx \pi$ , где  $\sigma_c = \varepsilon_{dd}^2(q = \pi)/|\varepsilon_{WdW}^2(q = \pi)| \approx 113.0975$ . Физическая причина указанной неустойчивости для системы частиц, взаимодействующих лишь путем сил Ван дер Ваальса, достаточно ясна. Взаимодействие Ван дер Ваальса является контактным и отвечает притяжению на малых расстояниях. Следовательно, для него энергетически выгодной является плотная структура (комок частиц), в которой имеет место максимальное число контактов между соседними частицами.

В заключение этого раздела обсудим роль дальнодействующего характера взаимодействий количественно. На рис. 3 приведен вид акустической ветви спектра, найденной при использовании различных приближений. На этом рисунке приведены как данные точного расчета при последовательном учете дальнодействия для обоих взаимодействий, так и приближенные данные с применением приближе-



**Рис. 3.** Зависимость  $\varepsilon$  от  $q$  для звуковой ветви спектра при различных величинах  $\sigma$  и разных режимах расчета: сплошные линии — точный расчет с учетом дальнодействия для обоих взаимодействий; штрихпунктирные и штриховые линии представляют данные приближенного расчета соответственно для магнитодипольного взаимодействия и для взаимодействия Ван дер Ваальса; пунктир — данные расчета в простейшем приближении для обоих взаимодействий

ния ближайших соседей для магнитодипольного взаимодействия или учета только слагаемых с  $\Delta = 2$  для взаимодействия Ван дер Ваальса; при этом другое взаимодействие учитывается точно. Кроме того, приведены данные расчета в простейшем приближении для обоих взаимодействий.

Результаты этого анализа оказываются достаточно неожиданными. По существу, расчет показывает сходный вклад эффектов дальнодействия как для взаимодействия Ван дер Ваальса, так и для дипольного взаимодействия. Прежде всего, заметим, что для случая  $\sigma = 0$ , когда спектр формируется только стандартным дальнодействующим дипольным взаимодействием, простейшее приближение взаимодействия ближайших соседей дает неплохое качественное описание точного спектра. (Естественно, для  $\sigma = 0$  вклад взаимодействия Ван дер Ваальса отсутствует и фактически надо рассматривать только две кривые.) Роль дальнодействия оказалась максимальной для больших значений  $\sigma$ , близких к критическому  $\sigma_c$ . Неожиданным является и тот факт, что роль дальнодействия наиболее существенна для больших квазимпульсов, когда, казалось бы, суммы, определяющие спектр, близки к знакопеременным, и должны характеризоваться достаточно быстрой сходимостью.

#### 4. МАГНИТНЫЕ КОЛЕБАНИЯ

Для описания «магнитных» колебаний уточним характер динамики индивидуальных магнитных моментов в цепочке частиц. Как упоминалось, будем рассматривать колебания магнитного момента частиц, связанные с поворотом частицы. Это условие достаточно очевидно при наличии сильной анизотропии, которая фиксирует момент вдоль оси анизотропии, связанной с частицей. При этом динамика частицы не сводится к чисто инерционной механической динамике частицы. Хотя соответствующие эффекты малы при сильной анизотропии, они представляют определенный интерес.

Пусть частица имеет ось легкого намагничивания  $\mathbf{n}$ ,  $\mathbf{n}^2 = 1$ , и ее энергию анизотропии можно записать в виде

$$W_a \approx -\frac{K_u}{2} \sum_n (\mathbf{m}_n, \mathbf{n}_n)^2.$$

Вообще говоря, надо рассматривать как поворот векторов магнитного момента  $\mathbf{m}$  относительно оси частицы, так и поворот оси  $\mathbf{n}$  для  $n$ -й частицы. Для описания динамики вектора  $\mathbf{m}$  относительно неподвижной частицы используем уравнение Ландау–Лифшица [45], см. также [1–3]:

$$\mu_0 \left( \frac{\partial \mathbf{m}_n}{\partial t} \right) = -\gamma [\mathbf{m}_n, \mathbf{H}_{n,eff}], \quad \mathbf{H}_{n,eff} = -\frac{\partial W}{\partial \mathbf{m}_n}.$$

Динамика вектора  $\mathbf{n}$ , т. е. поворот частицы, может быть описана стандартным механическим уравнением, в котором кинетическая часть определяется тензором моментов инерции частицы  $I_{ij}$ , в нашем случае  $I_{ij} = I\delta_{ij}$ . Если учесть, что отклонения обоих векторов,  $\mathbf{m}$  и  $\mathbf{n}$ , от оси цепочки малы, то можно использовать в качестве независимых переменных двумерные векторы  $\varphi = m_y \mathbf{e}_y + m_z \mathbf{e}_z$  и  $\psi = n_y \mathbf{e}_y + n_z \mathbf{e}_z$ ; при этом  $m_x = 1 - \varphi^2/2$  и  $n_x = 1 - \psi^2/2$ . Динамика этих переменных описывается функцией Лагранжа вида

$$L_m^{(tot)} = \frac{\mu_0}{2\gamma} \sum_n \left( \mathbf{e}_x \left[ \varphi_n, \frac{d\varphi_n}{dt} \right] \right) + \frac{I}{2} \sum_n \left( \frac{d\psi_n}{dt} \right)^2 - W(\varphi_n, \psi_n), \quad (9)$$

где первое слагаемое определяет стандартный вид кинетического слагаемого, приводящего (в линейном приближении) к уравнению Ландау–Лифшица для  $\mathbf{m}$ , второе — кинетическая энергия вращения

частицы как целого,  $W(\varphi_n, \psi_n)$  — полная «магнитная» часть энергии системы. Энергия  $W$  включает как энергию магнитного дипольного взаимодействия частиц, зависящую только от  $\mathbf{m}_n$ , т. е.  $\varphi_n$ , так и энергию магнитной анизотропии, которую в линейном приближении можно выразить как

$$W_a \approx \frac{K_u}{2} \sum_n (\varphi_n - \psi_n)^2,$$

а также зеемановскую энергию.

Следующее упрощение возникает, если принять, что поле анизотропии  $H_a = K_u/\mu_0$  велико по сравнению с характерным полем дипольного взаимодействия. Тогда варьирование (9) по  $\mathbf{m}_n$  дает

$$\begin{aligned} \frac{dm_y}{dt} &= \gamma H_a (m_z - n_z) + \gamma H_{mz}, \\ \frac{dm_z}{dt} &= -\gamma H_a (m_y - n_y) - \gamma H_{my}, \end{aligned} \quad (10)$$

где  $H_{my}$ ,  $H_{mz}$  — малые слагаемые, обусловленные дипольным взаимодействием частиц. Для неподвижной частицы ( $\mathbf{n} = \mathbf{e}_x$ ) эти уравнения описывают обычный магнитный резонанс, характерные частоты которого  $\omega_{FMR} \approx \gamma H_a$  лежат в диапазоне гига герц. Интересующие нас низкочастотные колебания, существенно связанные с движением частиц, характеризуются значительно более низкими частотами. Им отвечает другой возможный режим движения, для которого  $\varphi_n \approx \psi_n$ . Легко показать, что для описания низкочастотного движения можно с хорошей степенью точности использовать (9) с заменой  $\varphi_n = \psi_n$ . Фактически, это означает, что можно рассматривать только отклонения магнитного момента частицы от положения равновесия (оси цепочки  $x$ ), связанные с поворотами частицы. В таком случае выражение для функции Лагранжа в случае чисто магнитных колебаний принимает вид

$$\begin{aligned} L_m = \frac{\mu_0}{2\gamma} \sum_n \left( \mathbf{e}_x \left[ \psi_n, \frac{d\psi_n}{dt} \right] \right) + \\ + \frac{1}{2} k m a^2 \sum_n \left( \frac{d\psi_n}{dt} \right)^2 - W(\psi_n), \end{aligned} \quad (11)$$

где использовано конкретное выражение для момента инерции  $I = kma^2$ ,  $k$  — коэффициент инерции, т. е. отношение момента инерции и величины  $ma^2$ . Потенциальная энергия  $W(\psi_n)$  определяется только дипольным взаимодействием частиц и может быть записана в виде

$$\begin{aligned} W(\psi_n) = \frac{\mu_0^2}{2a^3} \times \\ \times \sum_n \left\{ h \psi_n^2 + \zeta(3) [2\psi_n^2 + \psi_{n+\Delta}^2 + \psi_{n-\Delta}^2] + \right. \\ \left. + \psi_n \sum_{\Delta=1}^{\infty} \frac{1}{\Delta^3} [\psi_{n+\Delta} + \psi_{n-\Delta}] \right\}. \end{aligned}$$

Из формулы (11) легко получить уравнения движения для переменной  $\psi_n$ :

$$\begin{aligned} \frac{d^2\psi_n}{dt^2} + \omega_0 \eta \left[ \mathbf{e}_x, \frac{d\psi_n}{dt} \right] + \frac{\omega_0^2}{k} \left\{ \psi_n [h + 2\zeta(3)] + \right. \\ \left. + \sum_{\Delta=1}^{\infty} \frac{1}{\Delta^3} \frac{\psi_{n+\Delta} + \psi_{n-\Delta}}{2} \right\} = 0, \end{aligned} \quad (12)$$

где введены обозначения

$$\eta = \frac{\mu_0}{\gamma \omega_0 I} = \frac{1}{\gamma k} \sqrt{\frac{a}{m}}. \quad (13)$$

Далее, используя в уравнениях движения подстановку  $\psi_n \propto \exp[i(\omega t - qn)]$ , получим покомпонентно

$$\begin{aligned} -\varepsilon^2 m_y + \eta i \varepsilon m_z + \varepsilon_m^2 m_y = 0, \\ -\varepsilon^2 m_z - \eta i \varepsilon m_y + \varepsilon_m^2 m_z = 0, \end{aligned} \quad (14)$$

где

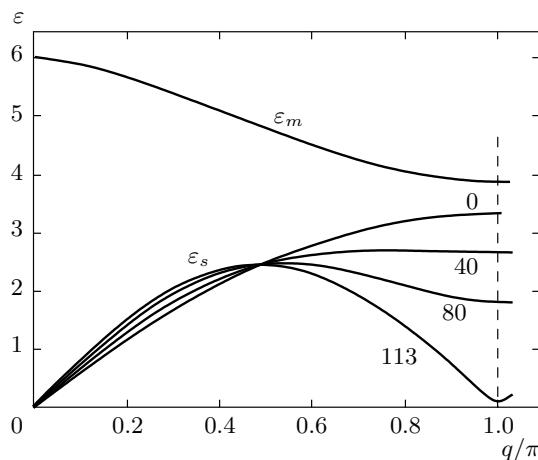
$$\varepsilon_m^2 = \frac{1}{k} \left\{ [h + 2\zeta(3)] + \sum_{\Delta=1}^{\infty} \frac{\cos(q\Delta)}{\Delta^3} \right\}, \quad (15)$$

$\varepsilon = \omega/\omega_0$ , а безразмерная величина  $h = Ha^3/\mu_0$  определяет вклад зеемановской энергии.

Решение характеристического уравнения с учетом равенства (15) дает следующий закон дисперсии:

$$\varepsilon^{\pm} = \pm \frac{\eta}{2} + \sqrt{\left(\frac{\eta}{2}\right)^2 + \varepsilon_m^2}. \quad (16)$$

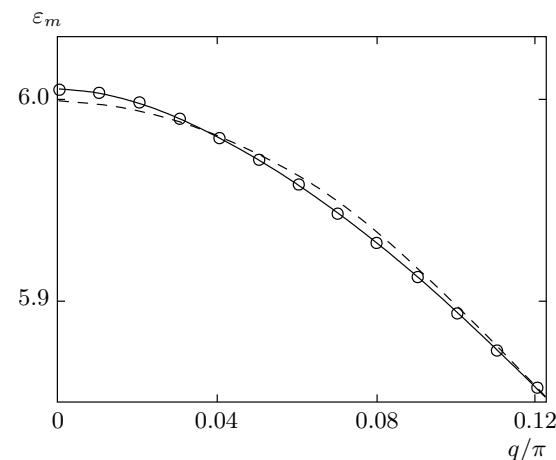
Уравнение (16) выражает закон дисперсии чисто магнитных колебаний линейной цепочки сферических частиц. Легко видеть, что нормальные моды таких колебаний имеют циркулярную поляризацию. Разным направлениям вращения момента (по и против часовой стрелки) отвечают разные частоты, соответственно  $\varepsilon^+$  и  $\varepsilon^-$ , которые разнесены между собой на величину  $\Delta\varepsilon = \varepsilon^+ - \varepsilon^- = \eta$ . Как будет показано ниже, эта величина на несколько порядков меньше «основной» величины  $\varepsilon_m$ , поэтому для закона дисперсии можно использовать приближенное выражение  $\varepsilon^{\pm} = \varepsilon_m \pm \eta/2$ , причем величина  $\eta$  не зависит от  $q$ . Таким образом, основной характеристикой закона дисперсии является функция  $\varepsilon_m = \varepsilon_m(q)$ , которая представлена на рис. 4.



**Рис. 4.** Спектр колебаний цепочки, включающий магнитные колебания с частотой  $\omega_m = \varepsilon_m \omega_0$  и звуковые колебания с частотой  $\omega_s = \varepsilon_s \omega_0$ , без учета гибридизации и расщепления частот магнитной ветви. Частоты магнитных колебаний представлены при  $h = 0$  и стандартном значении коэффициента инерции  $k = 0.1$ . Частоты звуковых колебаний построены для различных значений параметра  $\sigma$  ( $\sigma = 0, 40, 80$  и  $\sigma = 113 \approx \sigma_c$ ), отмеченных числами около соответствующей кривой

Значение функции  $\varepsilon_m^2(q)$  на границе зоны Бриллюэна  $q = \pi$ , важное для анализа гибридизации мод, легко представить в виде  $\varepsilon_m^2(q = \pi) = [h + 5\zeta(3)/4]/k$ , при  $h = 0$  это дает  $\varepsilon_m^2(q = \pi) = 1.50257/k$ . Из выражения (15) следует, что высота магнитной ветки спектра растет с ростом величины внешнего магнитного поля и она обратно пропорциональна коэффициенту инерции  $k$ . Отметим, что значение коэффициента инерции частицы  $k$  входит в частоты магнитной ветки простым мультипликативным образом и не меняет характера спектра, однако роль этого коэффициента важна при учете эффектов гибридизации мод, что будет рассмотрено подробнее в следующем разделе.

В заключение этого раздела заметим, что дальнодействующий характер магнитного дипольного взаимодействия может приводить к неаналитической зависимости частоты магнитной ветви от волнового числа при малых  $q$  или других особых точках зоны Бриллюэна. Такое поведение обусловлено тем, что хотя ряд, описывающий  $\varepsilon_m(q)$ , сходится, результат его двукратного почлененного дифференцирования расходится на больших расстояниях. В наиболее изученном двумерном случае сингулярность функции  $\varepsilon_m(q)$  достаточно сильная: вместо стандартного параболического закона дисперсии в двумерном



**Рис. 5.** Найденная численно зависимость  $\varepsilon_m(q)$  для  $k = 0.1$  при малых  $q$  (символы) и ее приближение различными пробными функциями. Видно, что зависимость вида  $A - Dq^2 \ln q$ , включающая логарифмический множитель (представленная на рисунке сплошной линией), значительно лучше описывает численные данные, чем простой параболический закон (штриховая линия)

случае  $\varepsilon_m^{2D}(q) \rightarrow C|q|$  при  $|q| \rightarrow 0$  [13, 14, 16–18]. Для нашего случая цепочки частиц (одномерной решетки) расходимость логарифмическая, сингулярность минимальная,  $\varepsilon_m(q) - \varepsilon_m(0) \propto q^2 \ln q$  и разрыв возникает только для второй производной этой функции [12]. Такое поведение хорошо согласуется с данными численного расчета по формуле (15), см. рис. 5.

## 5. ОЦЕНКА РОЛИ ГИБРИДИЗАЦИИ ВЕТВЕЙ СПЕКТРА

Ранее мы рассматривали раздельно упругие и магнитные колебания, отвечающие сдвигу и повороту частиц цепочки. Проверим применимость этого приближения, рассмотрев гибридизацию этих двух типов движения и формирование связанных магнитных и звуковых колебаний.

Функция Лагранжа в данном случае будет иметь вид суммы выписанных выше слагаемых  $L_s$  и  $L_m$ , описывающих соответственно чисто магнитные и чисто упругие колебания, и слагаемого  $L_{int}$ , определяющего связь этих степеней свободы. Выражение для  $L_{int}$  удобно записать в виде  $L_{int} = \sum_n L_{int,n}$ , где

$$L_{int,n} = \frac{3\mu_0^2}{2a^3} \sum_{\Delta=1}^{\infty} \frac{1}{\Delta^4} [\mathbf{u}_n(\psi_{n+\Delta} - \psi_{n-\Delta}) - \\ - \psi_n(\mathbf{u}_{n+\Delta} - \mathbf{u}_{n-\Delta}) + \psi_{n+\Delta}\mathbf{u}_{n+\Delta} - \\ - \psi_{n-\Delta}\mathbf{u}_{n-\Delta}]. \quad (17)$$

Решение связанных уравнений для  $\mathbf{u}_n$  и  $\psi_n$  дает закон дисперсии связанных магнитозвуковых колебаний в стандартном виде, см. [1]:

$$(\varepsilon^2 - \varepsilon_s^2)(\varepsilon^2 - \varepsilon_m^2) = \frac{9}{k} F^2(q), \quad (18)$$

$$F(q) = \sum_{\Delta=1}^{\infty} \frac{\sin q\Delta}{\Delta^4},$$

где  $\varepsilon_s$  и  $\varepsilon_m$  описывают невозмущенные спектры колебаний, определенные выше соответственно формулами (7), (8) и (15) (в левой части выражения (18) не учтено расщепление магнитной ветки спектра на лево- и правополяризованные, т. е. опущена величина  $\eta$  по сравнению с  $\varepsilon_m$ , поскольку это не приводит к каким-то качественно новым эффектам). Значения функции  $F(q)$  малы как при малых  $q$ ,  $F(q) = |q|\zeta(3) \approx 1.202|q|$ , так и при  $q \approx \pi$ , тогда  $F(q) = -0.75|\pi - q|\zeta(3) \approx -0.9015|\pi - q|$ . При конечных  $q \approx \pi - q \sim \pi/2$  функция  $F(q)$  содержит знакопеременный ряд и ее значения не превышают единицы.

Характер гибридизации магнитных и звуковых колебаний в значительной степени определяется значением коэффициента инерции  $k$ . Для наиболее естественной модели частицы в виде сплошного шара с постоянной плотностью значение коэффициента инерции  $k = 0.1$ . Спектр связанных звуковых и магнитных колебаний для этого случая представлен на рис. 6. Легко видеть, что в данном случае проявляется стандартная закономерность: поскольку кривые, описывающие невозмущенные спектры, не пересекаются, эффекты гибридизации не очень заметны [1] даже с учетом того факта, что величина энергии связи не содержит малого параметра (максимальное значение функции  $F(q)$  порядка единицы). Все факторы, повышающие частоту магнитной ветви (присутствие внешнего магнитного поля, уменьшение коэффициента инерции  $k$  по сравнению со стандартным значением  $k = 0.1$ ) приводят только к уменьшению роли гибридизации мод. Отметим, что случай  $k < 0.1$ , который имеет место для частицы, у которой более плотное магнитное ядро окружено менее плотной оболочкой, легко реализовать практически.

Однако простой расчет показывает, что для достаточно больших  $k$  может возникнуть пересечение невозмущенных спектров, при  $\sigma = 0$  это имеет место для  $k > k_c = 0.135$ . Эффекты гибридизации макси-

мальны при значениях  $k > 0.1$ , и далее будут обсуждаться все возможные значения этого коэффициента вплоть до максимально возможного значения  $k = 0.25$  (формальный предел частицы в виде полого шара, вся масса которого сосредоточена в тонкой оболочке). Таким образом, если случай  $k > 0.1$  может быть реализован, то эффекты гибридизации спектров магнитной и упругой ветвей оказываются не малыми.

На рис. 7 приведены данные анализа для максимально возможного значения  $k = 0.25$ . Отметим, что даже для этого значения  $k$  невозмущенные спектры пересекаются только для малого  $\sigma$ , а для случая  $\sigma = 100$  пересечение отсутствует. Однако независимо от наличия или отсутствия пересечения невозмущенных спектров, эффекты гибридизации ветвей весьма сильные. В частности, в случае  $\sigma = 100$  для обеих ветвей точного спектра появляются новые (по сравнению с невозмущенным случаем) экстремумы (отмеченные вертикальными стрелками на рис. 7) в зависимости частоты от  $q$ , а также меняется характер экстремума при  $q = 0$  для верхней ветви и при  $q = \pi$  для нижней ветви.

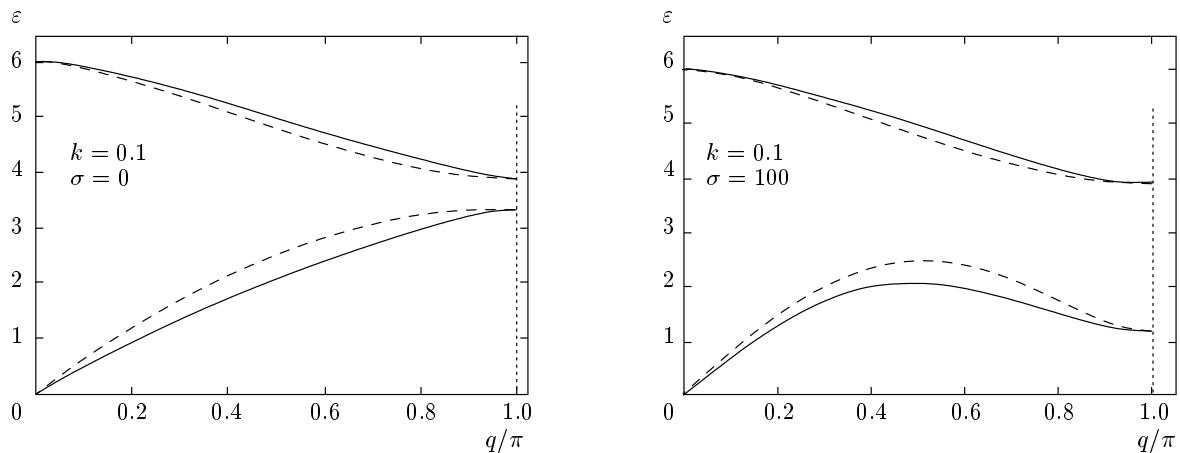
## 6. ОЦЕНКИ ХАРАКТЕРНЫХ ВЕЛИЧИН, ЗАКЛЮЧИТЕЛЬНЫЕ ЗАМЕЧАНИЯ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Приведем оценку характерных значений частот и их зависимостей от волнового числа для собственных мод системы. Как отмечалось, все частоты прежде всего определяются характерной величиной  $\omega_0$ , см. (6). Для оценки эту частоту удобно записать через намагниченность насыщения и плотность материала:

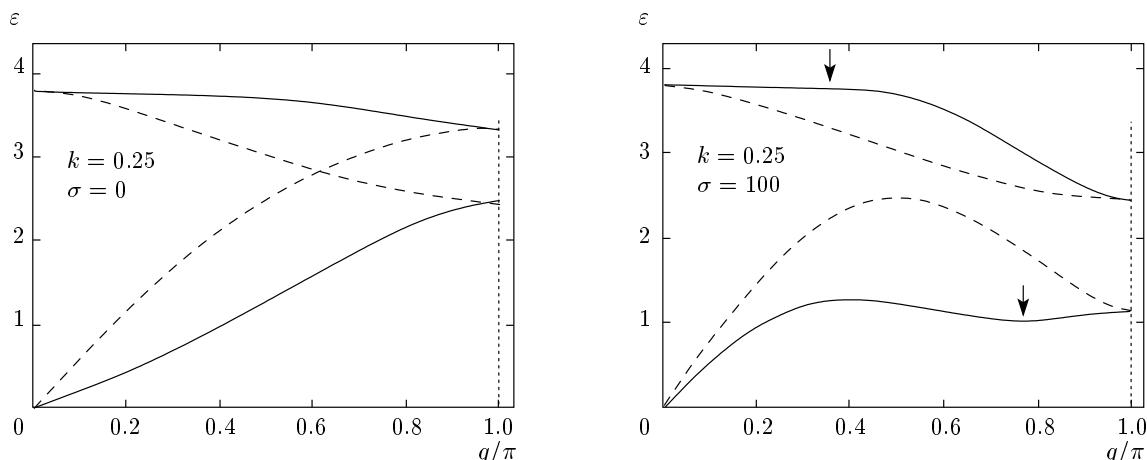
$$\omega_0 = \frac{\mu_0}{\sqrt{ma^5}} = \frac{M_s}{a} \sqrt{\frac{\pi}{6\rho}}. \quad (19)$$

Используя в (19) характерные значения  $M_s = 500$  Гс,  $a = 10\text{--}20$  нм,  $\rho = 5$  г/см<sup>3</sup>, получим оценку  $\omega/2\pi \approx 6\omega_0/2\pi \approx 100\text{--}200$  МГц, что удобно для измерений и важно для ряда приложений в радиоэлектронике и вычислительной технике.

Оценим величину расщепления дублета для магнитной ветки спектра  $\Delta\varepsilon/\varepsilon_m \approx \eta/6$ . В силу (13) эта величина обратно пропорциональна диаметру частицы  $a$ , причем коэффициент пропорциональности можно записать только через плотность материала, коэффициент инерции и мировые константы (заряд



**Рис. 6.** Гибридизация магнитной и звуковой веток спектра при последовательном учете взаимодействия для типичного случая  $k = 0.1$ . Отмечено два случая:  $\sigma = 0$  (слева) и  $\sigma = 100$  (справа). Сплошными линиями указаны точные спектры связанных колебаний, штриховыми линиями — приближенные спектры  $\varepsilon_{s0}$  и  $\varepsilon_{m0}$ , найденные выше без учета гибридизации



**Рис. 7.** То же, что и на рис. 6, но для модельной задачи с большим значением  $k = 0.25$ . Отметим, что и при наличии пересечения невозмущенных спектров (при  $q = 0.607\pi$  для случая  $\sigma = 0$ ), и при отсутствии такого пересечения (для  $\sigma = 100$ ) гибридизация мод существенно влияет на спектры

электрона  $e$ , массу электрона  $m_e$  и скорость света в пустоте  $c$ ):

$$\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon} \approx \frac{\eta}{6} = \frac{1}{6\gamma k} \sqrt{\frac{a}{m}} = \frac{a_*}{a}, \quad a_* = \frac{m_e c}{e k \sqrt{6\pi\rho}}. \quad (20)$$

Используя стандартные значения параметров  $k = 0.1$  и  $\rho = 5 \text{ г}/\text{см}^3$ , получаем, что величина  $a_*$  мала,  $a_* \approx 0.64 \text{ нм}$  (отметим, что величина  $a_*$  сравнима с размером элементарной ячейки магнетита  $a_0 = 0.84 \text{ нм}$ , которая содержит восемь формульных единиц  $\text{FeO}-\text{Fe}_2\text{O}_3$  и магнитный момент которой составляет  $32\mu_B$ ). Таким образом, расщепление

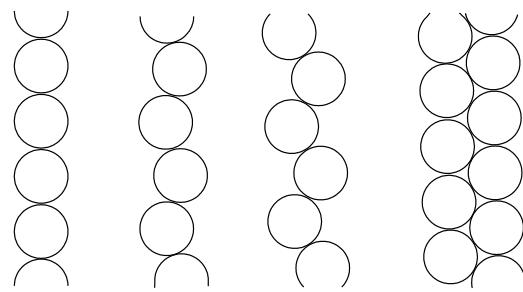
магнитной ветви в нашем случае, для наночастиц размером 10–20 нм, содержащих достаточно большое число элементарных ячеек, пренебрежимо мало (порядка нескольких процентов), практически незаметно на графиках дисперсионных зависимостей.

Важно отметить, что эффекты взаимодействия спиновых колебаний с локальными поворотами кристалла возникают в последовательной феноменологической теории магнитоупругого взаимодействия [1, 3]. Они проявляются в том, что энергия магнитоупругого взаимодействия включает не только симметричные компоненты

тензора деформаций  $u_{ik} = (\partial u_i / \partial x_k + \partial u_k / \partial x_i) / 2$ , но и антисимметричные компоненты вида  $\omega_{ik} = \partial u_i / \partial x_k - \partial u_k / \partial x_i$ , здесь  $\mathbf{u} = \mathbf{u}(\mathbf{r}, t)$  — вектор смещения элемента упругой среды [1]. Компоненты  $\omega_{ik}$  описывают локальный поворот среды, их вклад важен для построения вращательно-инвариантной теории магнитоупругого взаимодействия, см. [1, 3]; применение этой концепции к теории магнитных пластин и стержней было проведено в работе [46]. В нашем случае, для цепочки жестких частиц, эти эффекты проявляются на иных масштабах и связаны с поворотом отдельной частицы.

Эффекты влияния инерционной вращательной динамики частиц на магнитные колебания такого типа, как в нашей модели, могут оказаться важными для интересного класса материалов, молекулярных кристаллов, составленных из так называемых высокоспиновых молекул (high-spin molecules), см. обзор [47]. Такие молекулы содержат сотни атомов и имеют магнитный момент до 20 магнетонов Бора; эти молекулы, как и составленные из них кристаллы, в настоящее время интенсивно изучаются [47]. В этом случае для описания вращательных мод кристалла, включающих поворот магнитного ядра молекулы, при учете дипольного взаимодействия магнитных ядер молекул, должны формироваться коллективные волны описанного выше типа. Для этих волн характерна круговая поляризация и расщепление ветвей с различной поляризацией может оказаться не малым.

Таким образом, динамика системы магнитных частиц, упорядоченных в цепочку, имеет достаточно сложный характер, и ее собственные моды включают как вращательные (магнитные) колебания, так и трансляционные звуковые колебания (деформации цепочки типа продольного изгиба). В наиболее типичном случае, когда коэффициент инерции частицы  $k$  достаточно мал,  $k \leq 0.1$  (для частицы с однородным распределением массы  $k = 0.1$ ), можно отдельно рассматривать чисто магнитные колебания и чисто звуковые колебания, а эффекты их гибридизации пренебрежимо малы. Для данной задачи существенными оказываются нелокальность и учет дальнодействия обоих взаимодействий, взаимодействия Ван дер Ваальса и диполь-дипольного взаимодействия. Вид спектра существенно определяется соотношением величин магнитного и немагнитного взаимодействий, которое определяется параметром  $\sigma$ , см. формулу (8). В частности, при чисто дипольном взаимодействии ( $\sigma = 0$ ) зависимость частоты звуковой ветви от квазимпульса монотонная до самой границы зоны Бриллюэна, а при  $\sigma > \sigma^* \approx 30$  возни-



**Рис. 8.** Схематическое представление развития неустойчивости цепочки. Невозмущенное (линейное) состояние цепочки (слева) в результате нарастания малого начального возмущения (центральная часть) переходит в более плотное состояние «двойной» цепочки (справа)

кает немонотонность, и на границе зоны Бриллюэна имеется минимум. При  $\sigma \geq \sigma_c \approx 113$  этому минимуму отвечают значения  $\omega^2 < 0$ , т. е. цепочка теряет устойчивость относительно малых возмущений вида  $u_i \propto \exp(iql)$  с  $q \approx \pi/a$ . Смысл этой неустойчивости достаточно понятен; ей отвечают антифазные смещения соседних частиц (см. рис. 8), в результате нарастания которых произойдет «удвоение» цепочки, что можно рассматривать как начальный этап формирования плотной фазы.

Естественно, для полного анализа высокочастотных свойств такой системы было бы полезно исследовать затухание найденных мод. В данной задаче затухание является неотъемлемой частью динамики системы, из-за присутствия вязкости при движении частицы в жидкости. Затухание можно описать, введя стандартные диссипативные функции для вязкого движения, которые пропорциональны квадратичной форме от скоростей поступательного и вращательного движения [48]. В результате, скорость диссипации энергии будет пропорциональна квадрату частоты, т. е. декремент затухания будет пропорционален частоте волны. Таким образом, найденные коллективные моды даже в области линейного закона дисперсии заведомо не являются голдстоуновскими возбуждениями, их затухание пропорционально частоте и коэффициенту вязкого трения частицы в жидкости. Более детальные оценки для конкретных частиц и сольвантов выходят за рамки данной работы; тем более, что эффекты вязкости не влияют на важный результат работы об устойчивости цепочки и возможных сценариях нарушения ее устойчивости и перехода в плотную фазу (трехмерный кластер).

В нашей модели колебания чисто магнитного типа, частота которых существенно зависит от магнит-

ного поля, не проявляются в устойчивости цепочки. Неустойчивость связана со звуковыми колебаниями, спектр которых без учета гибридизации не зависит от магнитного поля. Из этого следует, что в нашей модели неустойчивость цепочки не зависит от значения поля и определяется только соотношением констант взаимодействия, что приводит к полученному выше критерию неустойчивости  $\sigma \geq \sigma_c$ . В то же время известно, что магнитное поле стабилизирует состояние цепочки. По-видимому, в реальном случае это связано с суперпарамагнитным поведением магнитного момента частиц, т. е. с немалыми тепловыми флуктуациями магнитного момента. Даже если вероятность таких флуктуаций мала, они могут существенно ослабить стабилизирующий эффект дипольного взаимодействия, однако даже слабое магнитное поле может подавлять эти флуктуации. В этом случае устойчивость определяется только соотношением дипольной энергии и молекулярного взаимодействия и мы возвращаемся к условию устойчивости в виде  $\sigma < \sigma_c \approx 113$ .

В заключение отметим роль гибридизации мод в проблеме устойчивости цепочки без учета суперпарамагнитных флуктуаций. Как отмечалось выше (см. формулу (18) и рис. 6), для волны с квазимпульсом на границе зоны Бриллюэна  $q = \pi/a$  частота не меняется и гибридизация не проявляется (формально, в силу того, что функция  $F(q)$ , определяющая связь мод, в этой точке обращается в нуль). Поэтому для стандартного сценария неустойчивости цепочки относительно этих возмущений учет гибридизации не важен и можно пользоваться простой зависимостью  $\omega_s(q)$ , см. разд. 3. Однако при достаточно сильной гибридизации возможен другой вариант поведения: при том, что частота для значения  $q = \pi/a$  не меняется, минимум  $\omega(q)$  в этой точке превращается в максимум, см. рис. 7. В этом случае минимум будет лежать при некотором значении  $0 < q < \pi/a$  и он будет определять неустойчивость. Поскольку с ростом поля эффекты гибридизации уменьшаются, этот эффект дает альтернативный критерий стабилизации состояния цепочки при увеличении магнитного поля, не связанный с суперпарамагнитными флуктуациями.

Мы признательны В. Г. Барьяхтару, В. Ф. Коваленко и Рою Шантреллу (Roy Chantrell) за полезное обсуждение результатов работы. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Украинского научно-технического центра STCU (грант № 5210).

## ЛИТЕРАТУРА

1. А. И. Ахиезер, В. Г. Барьяхтар, С. В. Пелетминский, *Спиновые волны*, Наука, Москва (1967).
2. К. П. Белов, А. К. Звездин, А. М. Кадомцева, Р. З. Левитин, *Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках*, Наука, Москва (1979).
3. Е. А. Туров, А. В. Колчанов, В. В. Меньшинин, И. Ф. Мирсаев, В. В. Николаев, *Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков*, Наука, Москва (2001).
4. J. M. Luttinger and L. Tisza, Phys. Rev. **70**, 954 (1946).
5. П. И. Белобров, Р. С. Гехт, В. А. Игнатченко, ЖЭТФ **84**, 1097 (1983).
6. J. G. Brankov and D. M. Danchev, Physica A **144**, 128 (1987).
7. S. Prakash and C. L. Henley, Phys. Rev. B **42**, 6574 (1990).
8. В. М. Розенбаум, В. М. Огенко, А. А. Чуйко, УФН **161**, 79 (1991).
9. J. E. L. Bishop, A. Yu. Galkin, and B. A. Ivanov, Phys. Rev. B **65**, 174403 (2002).
10. А. Ю. Галкин, Б. А. Иванов, А. Ю. Меркулов, ЖЭТФ **128**, 1260 (2005).
11. А. Ю. Галкин, Б. А. Иванов, Письма в ЖЭТФ **83**, 450 (2006).
12. И. Р. Каретникова, И. М. Нефедов, М. В. Сапожников и др., ФТТ **43**, 2030 (2001).
13. P. Politi and M. G. Pini, Phys. Rev. B **66**, 214414 (2002).
14. A. Yu. Galkin, B. A. Ivanov, and C. E. Zaspel, Phys. Rev. B **74**, 144419 (2006).
15. P. V. Bondarenko, A. Yu. Galkin, B. A. Ivanov, and C. E. Zaspel, Phys. Rev. B **81**, 224415 (2010); П. В. Бондаренко, А. Ю. Галкин, Б. А. Иванов, ЖЭТФ **139**, 1127 (2011).
16. С. В. Малеев, ЖЭТФ **70**, 2374 (1976).
17. P. Bruno, Phys. Rev. B **43**, 6015 (1991).
18. B. A. Ivanov and E. V. Tartakovskaya, Phys. Rev. Lett. **77**, 386 (1996).
19. R. Skomski, J. Phys.: Condens. Matter **15**, R841 (2003).

- 20.** *Advanced Magnetic Nanostructures*, ed. by D. J. Sellmyer and R. Skomski, Springer, New York (2006).
- 21.** M. Dvornik, P. Bondarenko, B. A. Ivanov, and V. V. Kruglyak, *J. Appl. Phys.* **109**, 07B912 (2011).
- 22.** A. A. Awad, G. R. Aranda, D. Dieleman et al., *Appl. Phys. Lett.* **97**, 132501 (2010).
- 23.** V. V. Kruglyak, S. O. Demokritov, and D. Grundler, *J. Phys. D Applied* **43**, 264001 (2010).
- 24.** Р. Розенцвейг, *Ферромагнитодинамика*, Мир, Москва (1989).
- 25.** S. Y. Yang, Y. H. Chao, H. E. Horng et al., *J. Appl. Phys.* **97**, 093907 (2005).
- 26.** Y. Zhang, L. Sun, Y. Zhai et al., *J. Appl. Phys.* **101**, 09J109 (2007).
- 27.** S. M. Zhou, M. T. Zhang, H. C. Gong et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 075217 (2008).
- 28.** V. Schaller, G. Wahnstrom, A. Sanz-Velasco et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **321**, 1400 (2009).
- 29.** R. Rungsawang, J. da Silva, C. Wu et al., *Phys. Rev. Lett.* **104**, 255703 (2010).
- 30.** A. Wu, P. Ou, and L. Zeng, *NANO* **5**, 245 (2010).
- 31.** R. P. Cowburn and M. E. Welland, *Science* **287**, 1466 (2000).
- 32.** T. C. Halsey and W. Toor, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2820 (1990).
- 33.** J. J. Weis and D. Levesque, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2729 (1993).
- 34.** P. Jund, S. G. Kim, D. Tomanek, and J. Hetherington, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3049 (1995).
- 35.** A. Satoh, R. W. Chantrell, S. Kamiyama, and G. N. Coverdale, *J. Magn. Magn. Mater.* **154**, 183 (1996).
- 36.** A. Satoh, R. W. Chantrell, S. Kamiyama, and G. N. Coverdale, *J. Colloid Interf. Sci.* **181**, 422 (1996).
- 37.** О. А. Антонюк, Б. М. Молдован, М. В. Петричук, В. Ф. Коваленко, *ЖТФ* **75**, 93 (2005).
- 38.** О. А. Антонюк, Б. М. Молдован, М. В. Петричук, and V. F. Kovalenko, *J. Colloid Interf. Sci.* **296**, 577 (2006).
- 39.** О. А. Антонюк, Б. М. Молдован, М. В. Петричук et al., *Funct. Mater.* **13**, 640 (2006).
- 40.** M. Klokkenburg, R. P. A. Dullens, W. K. Kegel et al., *Phys. Rev. Lett.* **96**, 037203 (2006).
- 41.** А. Ю. Зубарев, Л. Ю. Искакова, *ЖЭТФ* **132**, 1160 (2007).
- 42.** M. Yoon and D. Tomanek, *J. Phys.: Condens. Matter* **22**, 455105 (2010).
- 43.** M. Klokkenburg, B. H. Erne, J. D. Meedldijk et al., *Phys. Rev. Lett.* **97**, 185702 (2006).
- 44.** R. Toussaint, G. Helgesen, and E. G. Flekkoy, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 108304 (2004).
- 45.** L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Sov. Phys.* **8**, 153 (1935); Л. Д. Ландау, Собр. тр., т. 1, Наука, Москва (1969), с. 128.
- 46.** В. Г. Барьяттар, В. М. Локтев, С. М. Рябченко, *ЖЭТФ* **88**, 1752 (1985).
- 47.** W. Wernsdorfer, *Adv. Chem. Phys.* **118**, 99 (2001).
- 48.** Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, т. 6, *Гидродинамика*, Наука, Москва (1986).