

УДК 538.1

© 1993

СПИНОВАЯ ДИНАМИКА КЛАСТЕРНЫХ СИСТЕМ

А. И. Мицек

Спектры кластерных магнетиков рассчитываются в двух предельных случаях. В пределе сильного межкластерного обменного взаимодействия магнитная анизотропия (МА) самоусредняется. Для n -кластеров с центральным $4f$ -ионом, содержащих n «чужих» лигандов ($n=0, 1, \dots$), вклады в одноионную МА различны. Получаем три полосы возбуждений. Полоса $4f$ -ионных возбуждений содержит постоянный обменный вклад. Внутрикластерные ферромагнитоны имеют магнитную энергетическую щель и «эффективную обменную щель». Спектр поверхностных ферромагнтонов отличается константой спин-волновой жесткости. В пределе слабой связи кластеров предлагается дискретный аналог модели суперпарамагнетизма (СПМ) Нееля. Взаимодействие СПМ возбуждений с магнитоном приводит к квантовому времени релаксации. Это позволяет рассматривать кинетический переход в фазу спиновой стекла.

Новые материалы при описании их в рамках традиционных теорий требуют введения искусственных ограничений на измеряемые параметры. Сейчас быстро растут классы используемых дисперсных магнитных материалов. Аморфные пленки R_xT_{1-x} (где R — редкая земля, T — металл группы Fe) перспективны для устройств памяти. Измерения температурной зависимости намагниченности $M(T)$ в них в широком интервале концентраций $0.04 < x < 0.53$ ($R = Ce, Pr, Nd$; $T = Fe, Co, Ni$) показывают, что простая теория Блоха применима только выше $T = T_0$ ($10K < T_0 < 100 K$) [1]. Неожиданно важную роль играют одноионные возбуждения, особенно в $R-Ni$.

Ближний магнитный порядок даже в парамагнитной фазе обнаружен нейтронографически в фазе Лавеса $(Y_{1-x}Tb_x)Mn_2$ с корреляциями $Tb-Mn$ до 6-й координационной сферы. Они обнаруживаются в антиферромагнитной фазе при низких T [2] и $x \approx 1$. В фазе спиновой стекла (СС) в аморфном $Fe_xRu_{80-x}B_{20}$ ближний порядок интерпретируется как кластеры [3] при $x < 60$. Наблюдаемая $M(T)$ описывается экспонентой со щелью $\Delta = 400 K$ при $x = 60$ или $\Delta = 540 K$ при $x = 63.5$. При этом магнитные моменты Tm в аморфном $(Fe, Tm)-V$ отличаются от таковых в кристаллах [4]. Представления о магнитных и немагнитных атомах Fe в аморфных $(Fe_xCr_{1-x})V_y$ [5] при $x = 0.9$ укладываются в представления о ближнем (кластерном) магнитном порядке. Сильная дисперсия аморфных лент подтверждается изменением их свойств при удалении поверхностного слоя [6], которому соответствовала собственная (поверхностная) мода ФМР.

Скорость деполяризации нейтронов в СС $Au_{1-x}Fe_x$ [7] и ее зависимость от T интерпретируются как наличие компоненты (возможно, кластерной) с ферромагнитным порядком. Магнитная неоднородность аморфного $Gd-Co$ [8] позволяет ввести представление о неоднородности доменной стенки вблизи поверхности. Понижение T_c от 690 до 130 K при увеличении x для $Ho_{0.85}Tb_{0.15}Fe_{2-x}Co_x$ [9] ($0.5 < x < 2$) сопровождается сильными аномалиями электросопротивления при магнитных фазовых переходах, что также может быть связано с ближним порядком.

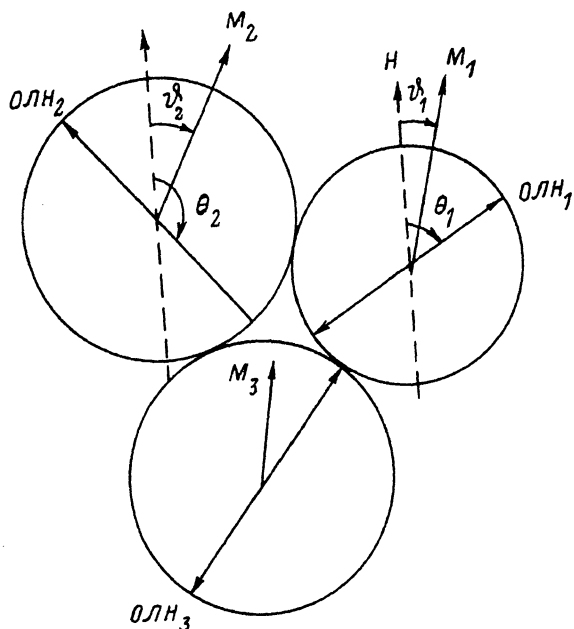


Рис. 1. Модель кластеров j , имеющих намагниченности M_j и оси магнитной анизотропии OLN_j .

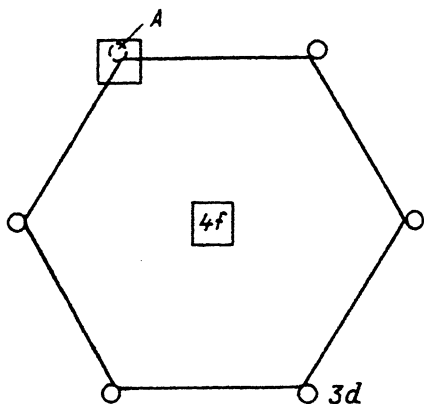


Рис. 2. Модель 1-кластера (1 «чужой» лиганд).

А соответствует модели О-кластера.

Отметим теорию [10], рассчитывающую в модели взаимодействующих кластеров скорость перемагничивания (пороговые поля и времена релаксации) для метгласов типа $TbFe_2$. Отметим также применение данных о теплоемкости с разрешением по времени до 10 мкс для определения спектра времен релаксации спинового стекла (СС) [11].

Интенсивное исследование метгласов, нанокристаллов, ансамблей малых частиц (~ 10 нм), составляющих значительную часть как магнитно-жестких, так и магнитно-мягких материалов, требует последовательной теории магнитных спектров. Установление магнитного порядка внутри элементарного представителя ансамбля (кластера) должно дополняться, во-первых, макропорядком всего ансамбля. Во-вторых, локальная магнитная анизотропия (МА) ионов k_i дополняется МА целых кластеров k_{cl} . Вторая часть теории составляет общепринятую модель суперпарамагнетизма (СПМ) Нееля. Ниже $T = T_A \sim k_i/k_B$ частицы замораживаются [12].

Возбуждения СПМ рассматриваются Неелем как континуальные отклонения намагниченности M_j кластера j от поля H (точнее, от H_{eff} при учете k_{cl}). Спектры кластеров при этом обычно не рассматриваются, хотя учитываются косвенно через $M_j(T)$ (т. е. магнитное упорядочение кластера ниже T_c^{cl}), магнитоанізотропную «щель» в ЭПР в СС, образуемых кластерами [13].

Взаимодействия между кластерами изменяют спектры [13]. Однако важно предельно разделить системы сильно и слабо связанных кластеров (рис. 1). Сильная связь приводит к дальнему порядку. Мы рассмотрим ферромагнитный (ФМ) случай. Слабая связь характерна для СС, которые при $T_f < T < T_c^{cl}$ проявляют СПМ свойства.

Для R—T соединений используем модель кластеров с $4f$ -центрами, окруженными $3d$ -лигандами. Попутно расчет определяет результирующую («наведенную») МА системы. Считаем доминирующей одноионную МА. Используем модель n -

кластеров, в которых в первой координационной сфере $4f$ -иона имеется n «чужих» лигандов — либо магнитных «дырок», либо тоже $4f$ -ионов и т. п. (рис. 2).

Предельный случай сильной связи кластеров рассматривается в разделе 1. Как обратный предельный случай в разделе 2 предлагается квантовый вариант СПМ теории Нееля, позволяющий найти границы ее применения и устанавливающий связь СПМ возбуждений со спиновыми волнами. Сравнение с экспериментом см. в разделе 3.

1. Кластерный ферромагнетик

Внутрикластерный порядок определяет обменный гамильтониан

$$\mathcal{H}_{ex} = - \sum_{\tau\rho} A_d (|\rho|) (\mathbf{S}_\tau \mathbf{S}_{\tau+\rho}) - \sum A_{d-f} (|\rho|) (\mathbf{J}_R \mathbf{S}_\tau) - \sum A_s (\mathbf{S}_\tau \mathbf{S}_\tau), \quad (1)$$

где учитывается дисперсия параметров обмена как между $3d$ -ионами A_d , так и с $4f$ -ионом A_{d-f} . Межкластерный обмен осуществляется на поверхностях кластеров: A_s .

Одноионная МА

$$\mathcal{H}_{Ad} = - \sum_{\mathbf{R}} k_{jn} (\mathbf{J}_R \mathbf{e}_j)^2 \equiv - \frac{k_n}{4} \sum_{\mathbf{R}} (-1 + 3 \cos 2\theta_j) (J_R^z)^2 \quad (2)$$

отличается для разных n -кластеров как по величине параметра k_{jn} , так и по угловой зависимости. В одноосной аппроксимации, в первом приближении после усреднения по ориентациям осей кластеров, образующим углы θ_j с M , выражение (2) может быть упрощено. Это приближение допустимо, когда результирующая намагниченность $M \parallel H$ при учете 0- и 1-кластеров (все лиганды одного $3d$ -типа либо 1 «чужой» лиганд).

Рассматриваем конус углов θ_j осей анизотропии кластеров ($\theta_j \ll \tau_n$) и получаем

$$\mathcal{H}_{Ad} = -k_n \sum_{\mathbf{R}} (J_{Rn}^z)^2,$$

$$k_n^- = \frac{k_n}{4} [-1 + 3f(\tau_n)],$$

$$f(x) = \frac{\sin 2x}{2x}, \quad (3)$$

что определяет разные спектры для разных n -кластеров. Однако для магненов с длинами волн $\lambda_m \gg R_{cl}$ (размера кластера) энергия МА усредняется. Приближение (3) реально в пределе $|A_{d-f}| \gg k_n$. Ниже не учитываем f - f -обмен, что позволяет по отдельности квантовать 0- и 1-кластеры.

При обратном неравенстве приходится учитывать неколлинеарность локальных усредненных моментов

$$\mathbf{J}_T = \langle \mathbf{J}_R \rangle, \quad \mathbf{S}_T = \langle \mathbf{S}_\tau \rangle. \quad (4)$$

Отсюда получаем один из механизмов образования СС в разбавленных $4f$ -соединениях.

Ансамбль спинов S_r рассматриваем как ФМ среду. Приходим к уравнениям для трех систем операторов S_r , T_{R0} и J_{R1} как внутри, так и на поверхности кластеров. Переходим в импульсное представление [13]

$$S_r = S_0 + \sum_q S_q e^{iqr},$$

$$S_q = \frac{1}{N_d} \sum_r S_r e^{-iqr},$$

$$J_{Rn} = \hat{J}_n + \sum_q \tilde{J}_{nq} e^{iqR},$$

$$\tilde{J}_{nq} = \frac{1}{N_n} \sum_R J_{nR} e^{-iqR}, \quad \{R\} \in C_n, \quad (5)$$

где \hat{J}_n — локальная часть момента, а \tilde{J}_{nq} описывает коллективные возбуждения с участием $4f$ -ионов. Если «чужим» оказывается $4f$ -лиганд, его окружение также можно рассматривать как $4f$ -центрированный кластер. Это упрощает рассмотрение, хотя и изменяет эффективное число 1 -кластеров N_1 . C_n — пространство n -кластеров.

При записи обменного гамильтониана в импульсном представлении выясним числа ближайших соседей. Эффективное координационное число для d - f -обмена

$$z_{fd}^* = z - n, \quad z = 12 \text{ для ГЦК кластеров.} \quad (6)$$

Для обмена внутри кластера $Z_d \cong 10$, тогда как на поверхности $z_s \sim 1$. Доминирующий d - d -обмен ($N_d = N_{cl} n_{cl}$)

$$\mathcal{H}_{ex}^i = -N_d \{ A_d(0) S_0 S_0 + \sum_q A_d(q) S_q S_{-q} \},$$

$$A_d(q) = z_d A_d \varphi(q), \quad (7)$$

где $N_{cl} = c_f N$ — число кластеров, $c_f \ll 1$,

$$\varphi(q) = \sum_p A_d(|p|) e^{iqp} / (A_d z_d),$$

$$T_c^{cl} \cong \xi_d A_d(0) S(S+1). \quad (7a)$$

На поверхности кластера $3d$ -ионы попадают в новые («поверхностные») условия, поэтому для их спинов введем символ σ_T

$$\mathcal{H}_{ex}^s = -N_s \{ A_s(0) \sigma_0 \sigma_0 + \sum_q A_s(q) \sigma_q \sigma_{-q} \}, \quad \sigma_T = \langle \sigma_T \rangle. \quad (8)$$

Число «поверхностных» спинов N_s определяется, в частности, дальнедействием $A_s(\rho)$. Их среднее значение σ_T определяет дальний порядок образца, поэтому температура упорядочения кластерного ферромагнетика T_c определяется (8)

Рис. 3. Спектры возбуждений магнитной подсистемы.

f — полоса возбуждений $4f$ -ионов, v — полоса «объемных» ферромагненов, s — ветвь возбуждений спинов поверхностей кластеров.

$$T_c = A_s(0) \sigma(\sigma + 1)/3, \quad \sigma \cong S \quad (9)$$

в приближении среднего поля. Под $A_s(0)$ следует понимать некоторое усредненное по кластерам значение «поверхностного» обменного параметра. Поскольку поверхностное координационное число в аморфном ферромагнетике $z_s \ll z_d$, то поверхностный обмен $A_s(0) \sim A_{d-z_s} \ll A_d(0)$. Поэтому $T_c \ll T_c^{cl}$. Хотя СПМ аморфных ферромагнетиков должен наблюдаться в широкой области $T_c < T < T_c^{cl}$, разброс значений $A_s(\rho)$ может приводить к заметным, хотя и трудно интерпретируемым без учета развитой здесь теории, отклонениям от закона Кюри—Вейсса в этой области T .

Энергии магнотонных ветвей рассчитываем методом [13]. Ветвь возбуждений $4f$ -подсистемы носит обменный, слабо дисперсный характер. Она образует полосу для разных $|Jm\rangle$ состояний $4f$ -иона (рис. 3)

$$E_f(m) \cong \mu_B g_J H + A_{d-f} S_T z_d + (2m - 1) k_j. \quad (10)$$

Подмагничивание объемных магненов также приводит к полосе в зависимости от $|Jm\rangle$ состояний $4f$ -ионов и проявляется в средней области волновых векторов q

$$e_m^v(q) \cong Dvq^2 + A_{d-f}m + \mu_B g H + 2 \sum_a k_a J_{Ta}. \quad (11)$$

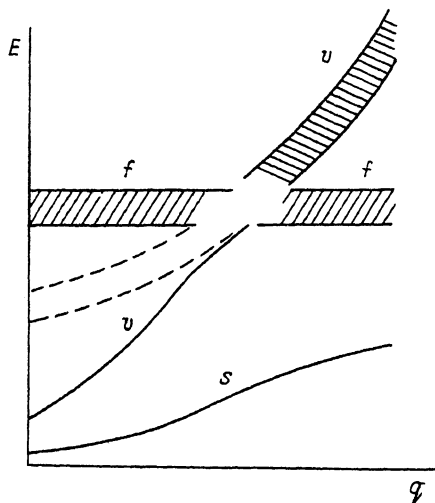
Появляется также спектр поверхностных ферромагненов. Без учета поверхностной МА их энергия

$$e^s(q) \cong D_s q^2 + \mu_B g H, \quad g \cong 2, \quad D_s \sim A_s(0), \quad (12)$$

их обменная жесткость $D_s < D_s$. Это должно проявляться при неупругом рассеянии нейтронов как уменьшение усредненной обменной жесткости и ее зависимости от температуры T .

2. Дискретный суперпарамагнетик Нееля

Модель Нееля широко используется для описания СПМ свойств малых ФМ частиц в распадающихся сплавах, при фазовых превращениях и т. п. Суть идеи Нееля — в замене спина иона суммарным моментом частицы. Насколько широко применение самой идеи, настолько мало внимания уделяется ее обоснованию. Очевидно, что для малых частиц размером ~ 1 нм, близких по своему строению к кластерам магнитных ионов в немагнитной среде, следует использовать квантовое описание спиновой системы. Рассмотрим переход от представления спина иона S_R в узле R к представлению на основе суммарного спина кластера (частицы)



$$S_{cl} = \sum_R S_R, \quad S_{cl} = n_{cl} S. \quad (13)$$

Гамильтониан модели Нееля в представлении S_{cl}

$$\mathcal{H}_N = -h_z S_{cl}^z - k_1 (S_{cl}^z)^2, \quad h = \mu_B g H \quad (14)$$

должен быть получен из исходного гамильтониана Гайзенберга. «Лишние» члены, которые останутся после сведения гамильтониана Гайзенберга к (14), определяют условия применимости модели Нееля, точнее, разделяются системы, в которых модель Нееля применима, и системы, где ее применение недопустимо. Сразу же очевидно, что в системах с сильной одноионной МА (редкоземельные соединения, актиниды) модель СПМ Нееля неприменима.

Исходный гамильтониан локализованных спинов узлов Γ решетки кластера

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_H = & -\frac{1}{2} N^{ij} (g\mu_B)^2 \sum S_i^j S_j^i - k_i \sum (S_i^z)^2 - \sum k_z(\rho) S_i^z S_{i+\rho}^z + \\ & + \mathcal{H}_{ex} - h S_{cl} \end{aligned} \quad (15)$$

имеет только два члена, общим с (13): первый — магнитостатический, т. е. энергия МА формы кластера, и последний — зеемановский. Обменный член состоит из взаимодействия внутри кластера и межкластерного обмена. Внутренний обменный гамильтониан коммутирует с (13) и определяет температуру спинового ФМ порядка частицы T_c^{cl} . Роль межкластерного обмена определяется геометрией системы кластеров.

Свойства СПМ системы кластеров, описываемых (14), рассчитываются из статсуммы ван Флека Z_{cl} для спина S_{cl}

$$Z_{cl} = \sum_{|m| \leq S_{cl}} \exp(-\beta \mathcal{H}_{mm}),$$

$$\mathcal{H}_{mm} = -k_1 m^2 - h m, \quad Z = (Z_{cl})^{N_{cl}}. \quad (16)$$

При $S_{cl} \rightarrow \infty$ имеем статсумму Ланжевена, используемую в классической модели Нееля. Первый член в диагональном матричном элементе гамильтониана \mathcal{H}_{mm} определяет замораживание спина СПМ частицы. Температура замораживания частиц T_f определяется k_1 , т. е. n_{cl} . Величина T_f сравнима с энергией перехода между уровнями

$$E_m = \mathcal{H}_{m-1, m-1} - \mathcal{H}_{mm} = h + (2m-1) k_1 \quad (17)$$

для $m = S_{cl}$. Поскольку магнитостатическая энергия мала, получаем $T_f \sim 10$ К при $k_1 n_{cl} \sim 10^{-3}$ эВ. Поэтому при $k_1 \sim 10^{-5}$ эВ необходимо для замораживания $n_{cl} \sim 10^2$ атомов в кластере.

Проблема сводится к более точному учету МА в СПМ системах. Найдем разность энергии МА исходной в (15) и в СПМ модели для $H \parallel Oz$

$$\Delta \mathcal{H}_A = -k_i \sum (S_i^z)^2 + \sum [k_1 - k_c(\rho)] S_i^z S_{i+\rho}^z. \quad (18)$$

Известно также, что для $n_{cl} > 10^2$ можно рассматривать спин-волновые возбуждения и их влияние на СПМ свойства $[1^2]$.

Сначала рассмотрим устойчивость возбужденных (неелевских) СПМ состояний. Характеризуем ее распадом возбуждений (17). Используем уравнения движения оператора спина кластера и введем двухвременные функции Грина

$$G_0 = \langle\langle S_{cl}^+ | S_{cl}^- \rangle\rangle, \quad G_r = \langle\langle S_r^+ | S_{cl}^- \rangle\rangle. \quad (19)$$

Уравнения движения для них решаем в первом приближении

$$(E - \hat{E}_0) G_0 \cong 2S_{cl}^z - 2 \sum \Delta k_c(\rho) S_T G_{r+\rho} - \sum \bar{k}_i G_r, \quad (20)$$

где

$$\Delta k_c = k_1 - k_c(\rho), \quad \bar{k}_i = k_i (2S_T - 1) \quad (21)$$

и квант Нееля (17) получается после проектирования оператора

$$\hat{E}_0 = h + k_1 (2S_{cl}^z - 1), \quad \hat{E}_0 | S_{cl} m \rangle = E_m \quad (22)$$

на пространство спиновых функций кластера $| S_{cl} m \rangle$. Проектируем уравнение (20) на это пространство

$$(E - E_m) G_0 = 2m - 2 \sum \Delta k(\rho) G_{r+\rho}, \quad (23)$$

где

$$\Delta k(\rho) \cong [k_c(\rho) - k_1 + k_i \delta(\rho)] S_T. \quad (24)$$

Уравнение для магنونной функции Грина

$$G_r = \sum e^{iqr} G_q \quad (25)$$

имеет вид

$$(E - \varepsilon_q) G_q \cong 2 \sum e^{-iq\rho} \Delta k(\rho) G_{r+\rho},$$

$$\varepsilon_q \cong \varepsilon_0 + Dq^2. \quad (26)$$

Аппроксимация (25) при $T < T_c^{cl}/2$ возможна при малых $q \ll 1$. Имеем

$$(E - \varepsilon_q) G_q \cong 2\bar{\Delta k} G_0 + O(q^2), \quad \bar{\Delta k} = \sum_{\rho} \Delta k(\rho). \quad (27)$$

Подставляем (26) в (23)

$$\left[(E - E_m) + \sum 4(\bar{\Delta k})^2 / (E - \varepsilon_q) \right] G_0 = 2m, \quad (28)$$

откуда находим перенормированные энергии возбуждений Нееля СПМ состояний (рис. 4). Вещественная их часть перенормируется за счет вклада в МА. Для нашего рассмотрения важна мнимая часть

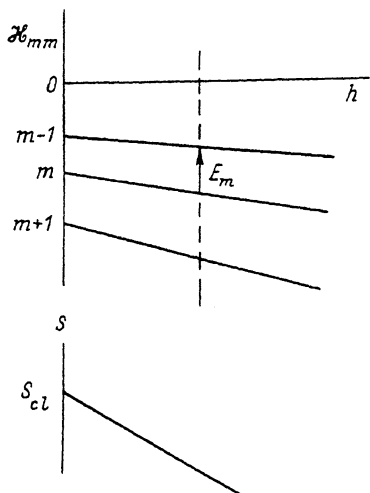


Рис. 4. Уровни энергии \mathcal{H}_{mm} дискретного анизотропного суперпарамагнетика (СПМ) и энергии E_m СПМ возбуждений.

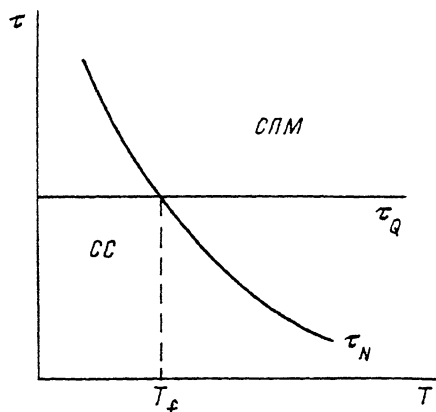


Рис. 5. Фазовая диаграмма системы слабо связанных кластеров.

τ_N — время релаксации СПМ модели Нееля, τ_Q — магнитное время релаксации СПМ состояний кластеров.

$$\text{Im } E_m = 8\pi \sum_q (\overline{\Delta k})^2 \delta(E - \varepsilon_q) \sim E_m (\overline{\Delta k}/D)^2. \quad (29)$$

Основной вклад в сумму (29) дают малые $q^2 \sim \overline{\Delta k}/D \sim 10^{-2}$, что подтверждает основное предположение при расчете (27).

Поскольку энергия СПМ возбуждений (22) $E_m \sim \hbar \gamma n_{cl} H$, где γ — гиромагнитное отношение, порядка тепловой энергии при $n_{cl} \geq 10^2$, кроссинг СПМ возбуждений и ферромагнетизма (26) реализуется в области ИК частот.

Рассмотрим взаимодействие между кластерами. Из-за большого разброса расстояний между поверхностными ионами разных кластеров оно может быть учтено в приближении среднего поля

$$\mathcal{H}_{int} \cong - \sum_{ij} A_{ij} (|\mathbf{R}|) S_{cl}^{(i)} S_{cl}^{(j)} \cong -\tilde{\lambda} \langle S_{cl} \rangle \sum_j S_{cl}^{(j)}. \quad (30)$$

Здесь

$$\langle S_{cl} \rangle = M/(\mu_B g N_{cl}), \quad N_{cl} n_{cl} = N, \quad (31)$$

где N — полное число магнитных ионов. Перенормируется зеемановский член

$$h \rightarrow \tilde{h} = h + \lambda M, \quad \lambda = \tilde{\lambda}/(\mu_B g N_{cl}), \quad \tilde{\lambda} = \sum_i \langle A_{ij} (|\rho|) \rangle_j \quad (32)$$

в случае $M \parallel H$. Остается возможность учета дисперсии $\lambda(\mathbf{R})$ с самосогласованным усреднением по кластерам. Тогда статсумма

$$Z = \prod_j Z_{cl}^{(j)} \cong (Z_{cl})^{N_{cl}}, \quad \Phi = -\frac{1}{\beta} \ln Z, \quad \beta = 1/k_B T, \quad (33)$$

статсумма кластера

$$Z_{cl} = \sum \exp \{ \beta (k_1 m^2 + \tilde{h}m) \}, \quad |m| \leq S_{cl}. \quad (33a)$$

Намагниченность

$$M = hQ\beta / (1 - \lambda Q\beta), \quad Q = n_{cl} \mu_{B\beta} Z_2 / Z_0, \quad T > T_f, \quad (34)$$

где

$$Z_{2p} = \sum_m m^{2p} \exp (k_1 m^2 \beta). \quad (35)$$

Замораживание спинов или переход в СС фазу ниже T_f связываем с их кинетикой. Для этого рассмотрим затухание неелевских возбуждений E_m (22) за счет их рассеяния на магнонах.

Времена жизни состояний кластеров τ определяются двумя процессами: 1) классическим (Нееля), зависящим от энергии барьера E_{bar}

$$\tau_N = \omega_0^{-1} \exp (\beta E_{bar}), \quad E_{bar} \sim k_1, \quad (36)$$

2) квантовым, т. е. временем жизни возбуждений Нееля E_m , согласно (20),

$$\tau_Q = 1 / \text{Im} E_m \sim [E_m (\overline{\Delta k} / D)^2]^{-1}. \quad (37)$$

Сравнивая времена (36) и (37), находим температуру кроссинга от классической кинетики СПМ Нееля (36) к квантовому (37) при понижении T . Имеем $\tau_Q < \tau_N$ при $T < T_Q$, где

$$T_Q = [k_1 + \lambda (M_0 + \chi \tilde{H})] / \ln (\omega_0 \tau_Q) k_B \rightarrow T_f. \quad (38)$$

Величину (38) можно сравнить с парамагнитной температурой Кюри взаимодействующих кластеров

$$\Theta_{sp} = \lambda Q / k_B = \lambda n_{cl} (\mu_{B\beta} / k_B) Z_2 (T) / Z_0 (T). \quad (39)$$

При малых k_1 обе величины (39) и (38) определяются взаимодействием кластеров λ . Однако при больших k_1 МА определяет замораживание и переход в СС фазу ниже T_Q . Этот процесс отличается от барьерного замораживания в классическом смысле теории Нееля (рис. 5).

Переход в фазу СС в нашем рассмотрении имеет чисто кинетический смысл. Его скорость определяется затуханием возбуждений Нееля при $T < T_Q$, когда разрушается СПМ режим системы кластеров.

3. Обсуждение и сравнение с экспериментом

1) МА, наводимая в аморфных и т. п. кластерных магнетиках, по-разному влияет на магнитные спектры в предельных случаях слабой и сильной связи между кластерами. Внедрение «чужого» иона, нарушающего симметрию лигандов, окружающих центральный 4f-ион 0-кластера, увеличивает энергию МА за счет появления 1-кластеров.

2) Появляется обменная (практически однородная) мода возбуждений 4f-ионов.

3) Энергия магновов сильных ферромагнетиков образует полосу за счет эффективной щели, определяющейся обменным подмагничиванием со стороны 4f-ионов. Реальная щель определяется усредненной МА.

4) В рамках теории Ван Флека удается построить непротиворечивую теорию суперпарамагнетизма Нееля и найти, что классическая СПМ модель Нееля применима при слабой МА и при $T > T_Q$.

5) Точка кроссинга от режима Нееля к режиму СС $T = T_Q \sim (k_f/D)^2 T_c^{cl}$ определяется одноионной МА и другими вкладками в МА. Переход в фазу кластерного СС тогда представляет собой кинетический процесс. Его описание в рамках равновесной термодинамики является достаточно грубым приближением.

Эти выводы позволяют однозначно трактовать большую часть экспериментальных данных. Обменные возбуждения 4f-ионов (10) определяют свойства R—T пленок [1] при низких $T < T_0$ и редкоземельных гранатов [14], когда магноны выморожены благодаря эффективной щели в их энергии (11). Обменная щель $\Delta \geq 400$ К определяет экспоненциальный ход намагниченности $M(T)$ в аморфных (Fe, Tm)—В [4].

Влияние 1-кластеров на ближний магнитный порядок в (Fe, Cr)—В [5] сказывается через состояния 3d-ионов с разным окружением. В этом одна из причин сильной неоднородности аморфных лент [6] и пленок [8], в которых разные концентрации 0- и 1-кластеров вблизи поверхности могут определять особые поверхностные свойства образцов.

Трудности интерпретации данных по деполяризации нейтронов в возвратном ферромагнетике Au—Fe [7] могут быть связаны с необходимостью учитывать как объемные [11], так и поверхностные кластерные магнитные моды. Хотя переходы порядок—беспорядок и резкое падение T_c при замене Fe на Co в системе $\text{Ho}_{0.85}\text{Tb}_{0.15}(\text{Fe}, \text{Co})_2$ [9], как и сильные аномалии электросопротивления при переходах, зависят от электронной структуры, динамика переходов должна определяться ближним (кластерным) порядком и локальной МА. Метод [11] измерения временных зависимостей теплоемкости в фазах СС может оказаться применимым для измерения времен релаксации Нееля (36) и квантового τ_Q (37). Детальный анализ данных опыта на основе полученных формул позволяет определять размеры кластеров (частиц), состав лигандов, состояния ионов, образующих кластеры. Предлагается вариант развития квантовой теории суперпарамагнетизма и спиновых стекол.

Определяющая роль 4f-примесей (Tb, Dy, Ho, Er) в Gd—Co при наведении МА [15] подтверждает одноионную модель МА и 1-кластеров. Определяющая роль 1-кластеров («чужих» лигандов) проявляется в резком увеличении наведенной МА аморфных Co—Zr сплавов [16]. Модель кластеров привлекается и для объяснения рентгеноспектральных данных около края полосы поглощения аморфного $\text{Fe}_{0.3}\text{Y}_{0.7}$ [17]. Кластерная модель возвратного ферромагнетика, аморфного $(\text{Fe}_{77}\text{Gr}_{23})_{75}\text{P}_{16}\text{B}_6\text{Al}_3$ объясняет минимум интенсивности упругого рассеяния нейтронов в окрестности $T_f \cong 10$ К, а также некоторое смягчение спин-волновой жесткости D при $T \rightarrow T_f + 0$ [18]. С кластерной теорией (см. также [19]) согласуется наблюдаемое при этом сильное уширение магнитных пиков, которые ниже T_f наблюдаются как квазиупругий пик, растущий при понижении T .

Список литературы

- [1] Peng C.-B., Dai D.-S., Fang R.-Y., Liu Z.-X. // J. Magn. and Magn. Mater. 1991. V. 92. N 3. P. 353—358.
- [2] Bailou E., Deportes J., Lenater R., Roault P., Souberoux J. L. // J. Magn. and Magn. Mater. 1990. V. 90—91. P. 559—560.
- [3] Jackson E. M. // J. Appl. Phys. 1990. V. 67. N 9. Pt 2B. P. 5238—5239.
- [4] Zhan W., Shen B., Zhao J. // Acta Phys. Sin. 1985. V. 34. N 12. P. 1613—1619.

- [5] Boliang Yu., Coey J. M. D., Oliver M., Strom-Olsen J. O. // *J. Appl. Phys.* 1984. V. 55. N 6. Pt 2A. P. 1748—1750.
- [6] Frait Z., Fraitowa D., Zarubowa N. // *Phys. Stat. Sol.* 1985. V. b128. N 1. P. 219—222.
- [7] Mitsud S., Yoshizawa H., Watanabe T., Itoh Sh., Endo Y., Mirebeau I. // *Techn. Rep. ISSP. A.* 1990. N 2859. P. 1—21.
- [8] Васьяковский В. О., Кандаурова Г. С., Герасимов Е. Г., Осадченко В. Х., Свалов А. В., Пампура Е. М. // *ФММ.* 1991. № 2. С. 85—91.
- [9] Dhilsta K. R., Rama Rao K. V. S. // *J. Appl. Phys.* V. 68. N 1. P. 259—262.
- [10] Creswell A., Paul D. I. // *J. Appl. Phys.* 1990, V. 67. N 9. Pt 2B. P. 5775—5777.
- [11] Pappas C., Meissner M., Schmidt G., Bontemps N. // *Physica B.* 1990. V. 165—166. Pt 1. P. 185—186.
- [12] Вонсовский С. В. *Магнетизм.* М.: Наука, 1971. 1032 с.
- [13] Мицек А. И. *Фазовые переходы в кристаллах с магнитной структурой.* Киев: Наукова думка, 1989. 320 с.
- [14] Lagutin A. S., Dmitriev A. V. // *J. Magn. and Magn. Mater.* 1990. V. 90—91. P. 83—84.
- [15] Sato R., Saito N., Togami Y. // *Jap. J. Appl. Phys.* 1985. V. 24. N 4. Pt 2. P. 266—268.
- [16] Fukunaga H., Narita K. // *Jap. J. Appl. Phys.* 1985. V. 24. N 1. Pt 1. P. 24—27.
- [17] Morrison T. L., Foiles C. L., Pease D. M., Zaluzec N. J. // *Phys. Rev. B.* 1987. V. 36. N 7. P. 3739—3744.
- [18] Wicksted J. P., Shapiro S. M., Chen H. S. // *J. Appl. Phys.* 1984. V. 55. N 6. Pt 2A. P. 1697—1699.
- [19] Мицек А. И., Гуслиенко К. Ю. // *ФММ.* 1990. № 12. С. 11—21.

Институт металлофизики АН Украины
Киев

Поступило в Редакцию
4 июня 1992 г.