Федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования
«ПЕРМСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ НАЦИОНАЛЬНЫЙ
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ»

На правах рукописи

Циберкин Кирилл Борисович

КОЛЛЕКТИВНАЯ ДИНАМИКА НИЗКОТЕМПЕРАТУРНЫХ ПАРАМАГНЕТИКОВ И УГЛЕРОДНЫХ КОМПОЗИТОВ

1.3.8. Физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание учёной степени
доктора физико-математических наук

Научный консультант:
д.ф.-м.н., профессор Хеннер В. К.

Пермь, 2025

Оглавление

Введение

Актуальность работы. Значимой частью процесса развития технологий на современном этапе выступает поиск новой материальной и физической базы для разработки быстродействующих и экономичных вычислительных устройств. Контролируемые спиновые явления рассматриваются как перспективный способ обработки и передачи информации, а также управления транспортными параметрами материалов. Многими научными группами теоретически и экспериментально исследуются процессы генерации и передачи спинового тока в проводниках, в значительной степени основанные на реализации коллективных процессов в ансамбле спинов валентных электронов в решётке. Наряду с этим, активно развиваются подходы к реализации устройств обработки и передачи данных на базе спиновых волн в диэлектриках, низкотемпературных парамагнетиках, разбавленных магнитных полупроводниках и др. Направления исследования в данных областях получили названия спинтроники и магноники. Изучаемые ими явления применимы, помимо устройств электроники и вычислительной техники, к разработке высокоэффективных накопителей энергии, характеристики которых контролируются приложенным магнитным полем, и высокочувствительных датчиков угловой скорости.

На современном этапе акцент смещается в сторону манипулирования единичными объектами и малоразмерными структурами, включающими порядка 10^1–10^4 отдельных магнитных центров. Такая размерность характерная для разнообразных компонентов наноструктур, элементов перспективных устройств спинтроники и магноники. Например, фуллереноподобная углеродная оболочка радиусом единицы нм содержит порядка 10^4 атомов углерода и такое же число свободных электронов. При осаждении на поверхности углерода примеси в концентрации 5–10% количество её ионов составит, соответственно, порядка 10^2–10^3 частиц.

Малая характерная размерность магнитных систем и устройств на их основе определяет, с одной стороны, высокую сложность прямой реализации квантово-механических расчётов, ввиду повышения трудоёмкости и ресурсозатратности последних, связанной с быстрым ростом размерности гильбертова пространства по мере добавления в систему новых частиц (для N частиц со спином 1/2 она составляет 2^N). На практике точные вычисления реализуемы для систем размерностью не более 10–20 частиц. Некоторое расширение этого предела реализуется на практике исключением из рассмотрения наименее вероятных квантовых переходов.

С другой стороны, размерность рассматриваемых систем мала по сравнению с пределами применимости статистической физики, поэтому важно построение легко масштабируемых и адаптируемых теоретических моделей коллективной спиновой динамики различных материалов и наноструктур. Комбинирование подходов физики сплошной среды, теории коллективных явлений и нелинейных волн позволяет перейти к осреднённому описанию систем и реализации эффективных моделей электронных, оптических и магнитных свойств. Анализ коллективных мод позволяет отказаться от формулировки дискретных решёточных моделей, описывающих эволюцию каждого элемента изучаемой системы по отдельности. Использование осреднения применительно к уравнениям нелинейной спиновой динамики, а в случае наибольшего числа частиц и описании протяжённых разреженных материалов – предела сплошной среды, – даёт возможность преодолеть эти ограничения, хотя и приводит к потере части информации о микроскопической структуре изучаемых материалов. Оно позволяет также находить из первых принципов эмпирические параметры, описывающие динамику спиновых и электронных систем, в частности, параметры релаксации в моделях типа уравнений Ландау–Лифшица, Ландау–Лифшица–Гильберта и т.п.

Квантовая теория спиновых волн отличается глубокой фундаментальной проработанностью, развитым применением методов теории возмущений, вторичного квантования и диаграммных техник, однако она применяется прежде всего к макроскопическим кристаллам магнитоупорядоченных веществ (ферромагнетиков, антиферромагнетиков и др. с высокой интенсивностью обменного взаимодействия). Им свойственна энергия взаимодействия порядка 10^{-1}–1 эВ, и поэтому коллективные моды в ферромагнетиках и антиферромагнетиках обладают высокой устойчивостью, что облегчает их реализацию и наблюдение. Волновые явления в таких материалах на день подробно исследованы. Теоретические результаты надёжно подтверждаются прямыми экспериментальными наблюдениями спиновых волн, например, методом рассеяния нейтронов, и магнитных солитонов. Отдельно описаны также ядерные СВ – связанные колебания электронных и ядерных спинов в кристаллах типа $MnCO_3$, $CsMnF_3$ и др. Теория СВ в пределе сплошной среды описывает динамику локальной намагниченности, в сочетании с экспериментом обеспечивая базу для изучения нелинейных явлений, реализации устройств спинтроники.

Энергия дипольного взаимодействия в тонких плёнках редкоземельных элементов ($GdCl_3$, EuO и др.) составляет 10^{-2}–10^{-1} мэВ, и в ряде случаев она превышает обменную, что исключает спонтанное упорядочение магнитных моментов вплоть до температуры порядка единиц К и ниже. РККИ-взаимодействие близкой к указанному значению интенсивности реализуется в двухкомпонентных системах, образованных внедрением примеси в парамагнитный кристалл (например, $(Cr_{1-x}Fe_x)_2B$, $Gd_{1.90}Co_{0.10}O_{3-\delta}$), и включающих атомы с различными гиромагнитными отношениями, димерных системах, формируемых парами атомов на проводящей подложке (атомы H, F, N на поверхности C, или Mn, V, Cr – на Cu), спиновых кластерах случайной структуры, внедрённых в диамагнитную решётку.

Перечисленные системы объединяются в класс низкотемпературных парамагнетиков. В сильном внешнем поле для них вводятся коллективные моды как отклонения магнитных моментов от насыщения. Анализ уравнений эволюции спиновых операторов методами теории нелинейных волн в приближении сплошной среды позволяет реализовать систематическое описание динамики намагниченности в этих условиях. Для численного моделирования свойств ансамблей примесных атомов и димерных систем эффективно осреднение по случайным пространственным распределениям магнитных центров.

Целью диссертационной работы является развитие теории коллективных мод намагниченности в концентрированных системах с дипольным и РККИ-взаимодействием вблизи состояния насыщения, в том числе описание спин-спиновой релаксации и спиновой диффузии, нелинейных волн и осреднённых сигналов намагниченности в условиях реализации коллективных мод, а также построение модели коллективной динамики электронов в углеродных наноструктурах с магнитной примесью.

Задачи диссертационной работы заключаются в:

1. построении аналитических моделей динамики локальной намагниченности концентрированных систем с дипольным или РККИ-взаимодействием в рамках приближения коллективных мод и сплошной среды, и установлении общих закономерностей динамики намагниченности таких спиновых систем;
2. исследовании равновесных и динамических свойств низкотемпературного парамагнетика при реализации спин-волнового режима вблизи насыщения в сильном внешнем магнитном поле;
3. выявлении в рамках построенных моделей условий существования волновых режимов одно- и двухкомпонентных магнитных систем;
4. установлении границ применимости построенных моделей к описанию электронных и магнитных свойств макро- и мезоскопических спиновых систем, углеродных наноструктур с магнитными примесями;
5. анализе влияния степени беспорядка в системе димеров, которые имеют случайный размер и энергию РККИ-взаимодействия с заданной функцией распределения, на равновесную намагниченность системы;

6. изучении перехода от индивидуальных осциллирующих сигналов намагниченности, полученных от элементов ансамбля спиновых кластеров, которые состоят из малого числа магнитных центров, случайным образом расположенных в диамагнитной решётке, к осреднённому монотонно убывающему сигналу.

Научная новизна результатов.

1. С применением вторичного квантования и приближения сплошной среды для низкотемпературного парамагнетика вблизи состояния насыщения получены уравнения динамики локальной намагниченности, описывающие спин-спиновую релаксацию и спиновую диффузию без применения феноменологических моделей.
2. Методом многих масштабов проанализирована иерархия режимов эволюции намагниченности концентрированного низкотемпературного парамагнетика в приближении сплошной среды, показано, что учёт несекулярных членов дипольного взаимодействия ограничивает допустимые направления движения солитонов.
3. Сформулирована динамическая модель двухкомпонентного материала, описывающая связанные колебания намагниченности его подсистем в приближении сплошной среды с учётом дипольного взаимодействия атомов основной решётки между собой, с атомами примеси, и РККИ-взаимодействия примеси.
4. Для ансамбля димеров найдено, что немагнитное состояние реализуется при отрицательном среднем значении АФМ-взаимодействия и малой дисперсии, и разрушается по мере роста последней.
5. Проведено осреднение пробных функций, описывающих огибающие сигналов поперечной намагниченности малых спиновых кластеров для нахождения суммарного сигнала их ансамбля; аналитически и численно продемонстрирован переход от осциллирующих сигналов к монотонному затуханию.

6. Реализовано осреднение уравнений эволюции операторов электронной плотности для углеродной наносферы в пределе сплошной среды, на основе полученной модели рассчитаны оптические, электронные и магнитные характеристики массива наносфер случайного размера, согласующиеся с экспериментальными результатами.

Выносимые на защиту положения:

1. Подход на основе коллективных мод к спиновым системам с дипольным или РККИ-взаимодействием вблизи состояния насыщения в сильном внешнем поле позволяет получить уравнения намагниченности, из первых принципов описывающие спин-спиновую релаксацию и спиновую диффузию.
2. В дипольной системе реализуется единая иерархическая структура динамических процессов на различных масштабах: дипольное уширение соответствует процессам со временем поперечной релаксации T_2, формирование нелинейных волн, солитонов намагниченности происходит на временах T_2^2, T_2^3 и бо́льших; устойчивость солитонов ограничена влиянием несекулярных членов дипольного взаимодействия.
3. В двухкомпонентной системе реализуются связанные волны намагниченности и солитоны, устойчивые при положительном знаке РККИ-взаимодействия ближайших примесных атомов, и угле между внешним полем и направлением солитонов, меньшим $\arccos\left(1/\sqrt{3}\right) \approx 57.3°$.
4. Для ансамбля димеров с заданной функцией распределения РККИ-взаимодействия немагнитное состояние разрушается при увеличении дисперсии энергии; в области низких температур пропорционально дисперсии размываются границы перехода в немагнитное и парамагнитное состояния.

5. Суммарный сигнал поперечной намагниченности ансамбля спиновых кластеров случайной структуры с дипольным взаимодействием ограничен законом $(t/T_2)^{-1}$, реализующимся при увеличении дисперсии размера кластеров; оценка, полученная осреднением модельных огибающих сигналов намагниченности, согласуется с численным моделированием динамики ансамбля.
6. При реализации коллективных мод спад поперечной намагниченности на временах, бо́льших T_2, идёт по закону $M_x \sim (t/T_2)^{-d/2}$, где d – пространственная размерность системы, и соответствует диффузионному процессу; зависимость отвечает экспериментальным и теоретическим результатам исследований спиновой динамики NV-центров, одномерных цепочек.

Методология и методы исследования. Все результаты, представленные в диссертационной работе, получены на основе актуальных подходов. Модели спин-волновой динамики построены применением преобразований Холстейна–Примакова и Дайсона–Малеева к гамильтонианам спиновых систем, включающих дипольное и обменное взаимодействие. Описание электронных свойств реализуется в рамках модели Хаббарда. На базе перечисленных моделей строятся эволюционные уравнения Гейзенберга для решёточных операторов, которые преобразуются к полевым. Используемый численный метод моделирования динамики намагниченности основывается на прямом вычислении уровней энергии и волновых функций спиновой системы с последующим построением в найденном базисе оператора эволюции и прямым вычислением наблюдаемых функций намагниченности.

Достоверность результатов работы обеспечивается построением теоретических моделей на базе установленных фундаментальных соотношений и представлений квантовой механики, квантовой и статистической теории твёрдых тел, методов нелинейной динамики, сопоставлением результатов аналитических расчётов и численного моделирования, экспериментов при наличии такой возможности, сопоставлением численных результатов, полученных независимыми подходами, согласованием результатов с фундаментальными закономерностями физики магнитных явлений.

Практическая значимость. Результаты работы имеют приложения к разработке и исследованию перспективных материалов, применимых в устройствах спинтроники и магноники: резонаторах и модуляторах, ячейках памяти. На их основании возможно прогнозировать оптимальные рабочие частоты устройств, оценить времена хранения и скорость передачи информации в различных спиновых конфигурациях, определить критерии существования устойчивых спиновых состояний при различных температурах и управляющих внешних полях.

Исследования, вошедшие в диссертацию, проводились в рамках работ по следующим проектам:

- грант РФФИ 17-42-590271 «Исследование электромагнитных свойств углеродных нанооболочек для накопителей энергии высокой ёмкости»;
- грант Совета по грантам Президента Российской Федерации МК-1422.2020.2 «Волновые явления в парамагнетиках, разбавленных ферромагнитными примесями»;
- проекты Международных исследовательских групп при поддержке Министерства образования и науки Пермского края, совместно с Университетом Луисвилля (г. Луисвилль, Кентукки, США):
  - С-26/628 «Экспериментальное и теоретическое изучение физических свойств новых магнитных наноматериалов»;
  - С-26/798 «Применение углеродных нанооболочек для создания новых типов суперконденсаторов».

Апробация работы. Результаты, приведённые в диссертации, представлены на конференциях: 2nd International Conference and Exhibition on Mesoscopic and Condensed Matter Physics (Чикаго, 2016 г.); научная школа «Нелинейные волны» (Нижний Новгород, 2018, 2024 гг.); Всероссийская конференция «Пермские гидродинамические научные чтения» (Пермь, 2018, 2020, 2023); региональная конференция «Физика для Пермского края» (Пермь, 2018, 2019, 2020); Международная зимняя школа физиков-теоретиков «Коуровка» (Екатеринбург, 2020); XXI Всероссийская школа-семинар по проблемам физики конденсированного состояния вещества (Екатеринбург, 2021); Международный симпозиум «Неравновесные процессы в сплошных средах» (Пермь, 2021); Международная конференция "Modern Development of Magnetic Resonance" (Казань, 2021, 2023); Международный симпозиум "Trends in Magnetism" EASTMAG-2022 (Казань, 2022); Международная конференция "Magnetic Resonance – Current State and Future Perspectives (EPR-80)" (Казань, 2024).

Результаты доложены также на семинарах: ПГНИУ по теоретической физике (Пермь, 2021, 2022, 2024 гг.), ИТЭФ НИЦ «Курчатовский институт» (Москва, 2024 г.), ИРЭ РАН, семинар «Проблемы магнитного резонанса» (Москва, 2024 г.), ФТИ им. Иоффе, семинар сектора теории оптических и электрических явлений в полупроводниках (Санкт-Петербург, 2024 г.), заседании Учёного совета КФТИ им. Е.К. Завойского ФИЦ КазНЦ РАН (Казань, 2025 г.), Научном семинаре ФМИ ПГНИУ (2025 г.).

Публикации и личный вклад автора. Материалы диссертации опубликованы в **18** статьях в рецензируемых журналах, в том числе **15** статей – в изданиях, индексируемых Scopus, Web of Science и включённых в RSCI, ядро РИНЦ, **3** статьи – в изданиях из перечня ВАК, получено **1** свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ. Опубликовано также 23 материала конференций, тезиса докладов и статьи в изданиях и сборниках, не включённых в перечень ведущих изданий.

В опубликованных по теме диссертации работах автор лично разрабатывал и формулировал теоретические модели, проводил аналитические расчёты волновых процессов в слабо связанных магнетиках, численное моделирование динамики систем, интерпретацию результатов и оценку их применимости, достоверности результатов и выполненных приближений, подготавливал тексты и иллюстративный материал для публикаций.

В работах, выполненных в сотрудничестве с экспериментаторами при реализации проектов по созданию накопителей энергии, и при участии разработчиков численных алгоритмов моделирования спиновых систем, автор непосредственно участвовал в планировании исследований, формулировке конкретных задач, верифицировал и модернизировал численные алгоритмы, принимал участие в подготовке коллективных публикаций.

Содержание и структура работы. Диссертация состоит из введения, в котором даётся общая характеристика работы, шести глав и заключения со списком цитируемой литературы.

В первой главе представлен обзор исследований и основных достижений в области коллективных магнитных явлений и их потенциальных приложений, а также развития приложения подходов нелинейной динамики к физике конденсированного состояния и магнетизму. Методы анализа коллективных явлений глубоко проработаны применительно к магнитоупорядоченным материалам – ферро-, антиферромагнетиках. Многие результаты имеют экспериментальные подтверждения с конкретными приложениями. Применительно к низкотемпературным парамагнетикам эти исследования более ограничены ввиду специфики условий реализации коллективных явлений – необходимости использования низких температур и сильных постоянных полей, упорядочивающих систему. В совокупности, коллективные явления в углеродных материалах, одно- и многокомпонентных низкотемпературных парамагнетиках с дипольным взаимодействием играют важную роль в спиновой динамике, процессах диффузии намагниченности и поперечной релаксации.

Во второй главе построена модель динамики намагниченности низкотемпературного парамагнетика на основе подхода вторичного квантования и приближения сплошной среды. Дан анализ особенностей динамики намагниченности на различных временных масштабах, установлена иерархия динамических процессов от однородной ларморовской прецессии, дипольного уширения спектральных линий до формирования нелинейных волн, в том числе солитонов намагниченности.

В третьей главе описываются свойства двухкомпонентного магнетика, состоящего из парамагнитной решётки с внедрёнными в неё примесными ионами. Построена модель динамики намагниченности взаимодействующих подсистем – основной решётки и ансамбля примесных атомов, проанализированы волновые решения и условия их устойчивости. На основе димерной модели со случайными параметрами проанализированы равновесные свойства примесной подсистемы в материале. Рассматривается также численное моделирование обменного магнетика с конкурирующими взаимодействиями в первой и второй координационной сфере.

В рамках четвёртой главы описаны результаты численного моделирования динамики намагниченности в парамагнитных системах, полученные методом сложения сигналов, рассчитанных для невзаимодействующих спиновых кластеров малой размерности случайной или регулярной структуры. Получены аналитические оценки асимптотики намагниченности на больших временах, моделирование верифицировано методом моментов.

В пятой главе рассматривается реализация коллективных мод в низкотемпературном парамагнетике и её применение к расчёту свойств системы вблизи состояния насыщения, обусловленного наложением сильного внешнего поля. Получены дисперсионные соотношения линейных волн намагниченности при различной ориентации внешнего поля для структур различной размерности, вычислены вклады коллективных мод в равновесные параметры материала, отклики на возмущения внешнего поля.

Шестая глава описывает результаты применения приближения сплошной среды к модели Хаббарда для описания сферической углеродной нанооболочки радиусом порядка единиц нм, и расчёта её электронных, оптических и магнитных свойств. Получены уравнения для эволюции плотности электронных состояний, найдены энергетические спектры, рассчитаны оптические спектры и особенности намагниченности композита, состоящего из независимых углеродных сферических оболочек.

В заключении сформулированы основные выводы по результатам данной диссертационной работы.

Общий объём диссертационной работы составляет 251 страницу, включая 70 иллюстраций и 7 таблиц. Библиография содержит 360 наименований.

Благодарности

Автор благодарит своих наставников, учителей, коллег и соавторов: Д. В. Любимова, Н. И. Лобова, М. А. Марценюка, Д. И. Кадырова, С. В. Шкляева, а также В. К. Хеннера, Т. П. Любимову, В. А. Демина, П. Г. Фрика, Д. С. Голдобина, Д. А. Петрова, А. А. Алабужева, К. А. Гаврилова, С. Ю. Подтаева, А. И. Ершову, И. А. Мизёву, Л. С. Клименко, А. Е. Самойлову, П. В. Краузина, Р. С. Пономарёва, А. В. Сосунова, Г. А. Рудакова, коллектив кафедры теоретической физики и физического факультета ПГНИУ – за бесценный опыт, примеры безупречного научного мышления и неутомимого интереса к новому, фундаментальные знания, полезные и интересные обсуждения задач, постоянную поддержку в самых разнообразных ситуациях и делах.

Глава 1. Исследования коллективных магнитных и электронных явлений в конденсированных средах

1.1. Линейные и нелинейные волновые процессы в спинтронике

Развитие микроэлектроники на сегодняшний день идёт по нескольким направлениям. Помимо «традиционной» электроники, фундаментальные принципы которой базируются на физике полупроводников с электронами и дырками в роли носителей заряда, разрабатываются альтернативные способы обработки и передачи аналоговых сигналов и цифровой информации. Это и уже устоявшиеся фотоника и спинтроника [1–3], и иные новые направления. В частности, отдельными авторами выделяется магноника как подразделение спинтроники, которое специализируется на использовании спиновых волн и иных проявлениях коллективной динамики магнетиков [2]. На технологическом уровне осуществляется качественный переход к манипулированию отдельными микрообъектами вплоть до возможности прямого построения микроскопической структуры материалов и электронных устройств. Управление отдельными магнитными моментами и их кластерами в таких структурах выступает одной из ключевых задач данного направления.

Начало разработок в области спинтроники связано с явлением магнетосопротивления и связанных с ним процессами. В основополагающих работах Мотта и Хаббарда показано существенное влияние спина на транспортные характеристики материалов [4–6]. В любом проводнике можно выделить две почти независимые подсистемы, обладающие противоположной ориентацией спина носителей заряда. Ортогональность различных спиновых состояний обусловливает относительно малую вероятность переворота спина, что ярко проявляется при протекании тока в ферромагнетиках [5, 7]. Приложение к нему магнитного поля вызывает перераспределение электронов между спиновыми состояниями и сопутствующий выраженный отклик проводимости [8–10]. На явлении спинового транспорта реализуется работа спинового вентиля – устройства, динамически изменяющего свою проводимость при контроле намагниченности образующих его слоёв ферромагнитного (ФМ) материала [11] (рис. 1.1).

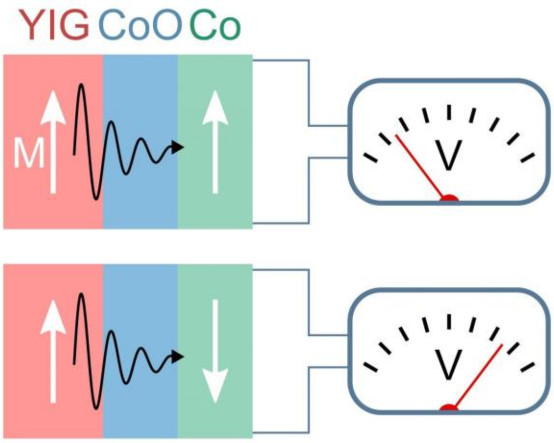


Рис. 1.1. Схематичное изображение структуры и работы спинового вентиля; намагниченность одного из ферромагнитных слоёв закреплена благодаря взаимодействию со стороны антиферромагнетика; при одинаковом направлении намагниченности ФМ-слоёв сопротивление вентиля падает

Развитие исследований в области спиновых вентилей и других многослойных структур показало, что намагниченность в ферромагнитных слоях часто проявляет сложную нелинейную динамику [12–15]. В системе могут реализоваться несколько положений равновесия – устойчивые и неустойчивые фокусы, седловые точки. Наличие устойчивых равновесий позволяет использовать их в качестве основы для создания спиновых логических элементов, магнитных считывающих и записывающих головок, а также ячеек памяти. В некоторых случаях имеет место также реализация устойчивых предельных циклов в фазовом пространстве компонент намагниченности. Характерные частоты прецессии близки к соответствуют сантиметровым и микроволновым диапазонам и отличаются высокой стабильностью, что также даёт возможность применения спиновых вентилей в состояниях предельного цикла в качестве СВЧ-наногенераторов [16–18].

Высокая чувствительность магнитомягкого слоя спинового вентиля к внешним полям даёт возможность реализации химических и биологических сенсоров, использующих в работе осаждение магнитных наночастиц на поверхности датчика [19, 20].

Значимой частью спинтроники выступают исследования систем «сверхпроводник – ферромагнетик» [1]. Как известно, сверхпроводящее состояние разрушается под воздействием достаточно сильного магнитного поля или при внедрении в материал ферромагнитной примести. Это происходит благодаря конкуренции фононного механизма формирования куперовских пар и обменного взаимодействия, упорядочивающего спины электронов [21]. Современное углубление и расширение представлений о возможностях управления сверхпроводящим состоянием и проводимостью джозефсоновских контактов стали возможны благодаря реализации надёжных технологий синтеза сверхрешёток и тонкоплёночных структур. Среди значимых эффектов для сверхпроводящей спинтроники можно отметить формирование сверхпроводящих каналов над доменными стенками в ферромагнитной плёнке [22, 23]. Их ширина и устойчивость зависят от температуры и напряжённости наложенного магнитного поля. Другим значимым объектом изучения в этой области выступает джозефсоновский контакт с ферромагнитным диэлектрическим слоем [24–26].

По мере развития спинтроники возрастает практическая значимость коллективных явлений, которые исторически в бо́льшей мере рассматривались как фундаментальные механизмы, определяющие наблюдаемые свойства конденсированных сред, прежде всего – при низких температурах [27–34]. Наиболее подробные сведения на сегодняшний день получены о коллективной динамике намагниченности в ферромагнетиках и антиферромагнетиках, поскольку их характеристики определяются прежде всего обменным взаимодействием высокой интенсивности. Благодаря этому оно остаётся существенным как вблизи абсолютного нуля, так и при высоких температурах, для многих веществ – вплоть до комнатных и выше.

Важным преимуществом спиновых волн является тот факт, что спиновый ток переносится ими со значительно меньшими потерями, чем электронами или дырками, которые относительно быстро теряют энергию по мере движения. Это ограничивает «традиционную» спинтронику преимущественно низкими температурами, тогда как в области, использующей коллективные моды – магнонике – имеется возможность реализовать перенос спинового тока и генерацию СВЧ-частот при температурах вплоть до комнатных [2]. Снижение потерь определяет высокую экономичность устройств на базе спиновых волн.

Многие результаты в изучении свойств спиновых токов получены на железоиттриевом гранате ($Y_3Fe_5O_{12}$, ЖИГ) [35]. Поскольку это диэлектрик, то в нём отсутствует диссипация энергии за счёт джоулева нагрева при протекании тока, мало электрон-магнонное рассеяние. Для ЖИГ устройств разработаны эффективные методы инжекции и вывода спиновых токов. Реализовано управление намагниченностью посредством спинового тока [36], параметрическая накачка спиновых волн [37, 38]. Ведутся разработки аналоговых и логических магнонных схем [39], логических магнонных вентилей [40] на базе ЖИГ-волноводов (пример схемы спинового устройства показан рис. 1.2).

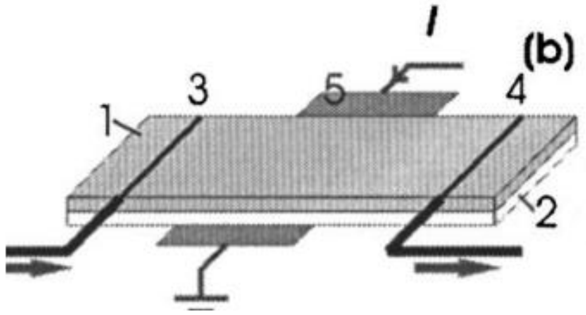


Рис. 1.2. Пример спинового устройства на базе ЖИГ: схема контролируемого сдвига фазы микроволнового сигнала с использованием магнитостатических мод спиновых волн. Цифрами обозначены: 1 – ферромагнитная плёнка (спиновый волновод) из ЖИГ; 2 – немагнитная подложка; 3, 4 – микрополосковые линии ввода и вывода сигнала; 5 – управляющий проводник [40]

Первое наблюдение индуцированного электрическим полем сдвига частоты спиновых волн в феррите лития относится к концу 1970-х гг. [41]. Однако в этом материале сдвиги составляют величину лишь порядка 10 ppm, поскольку они определяются анизотропией магнитной энергии кристалла. Перспективным материалом для реализации электрически управляемых спиновых волн выступают мультиферроики, особенностью которых является наличие электрической поляризации, спонтанной, индуцированной внешним магнитным полем или магнитными примесями [42–45]. В результате, управляя величиной поляризации, удаётся обеспечить изменение частоты спиновой волны до 30% в таком материале, как $BiFeO_3$ (BFO) при комнатной температуре [46]. ЖИГ не имеет спонтанной электрической поляризации, и поэтому не является оптимальным материалом для электрического управления магнонными токами этим способом [47], хотя определённые механизмы контроля в нём обеспечиваются посредством взаимодействия Дзялошинского–Мория [48]. Спиновые волны в мультиферроиках также сравнительно подробно изучены, и используются для создания ряда СВЧ-устройств с высокоточным контролем рабочей частоты [49]. Интерес для изучения и разработки устройств спиновой логики и памяти представляют также процессы интерференции спиновых волн [50–56]. На основе интерферометрических схем реализуются методы управления фазой и амплитудой спиновой волны. Например, для создания логических элементов применяются скрещённые волноводы, в области пересечения которых и происходит интерференция, которая определяет выходной сигнал устройства.

Интерес к изучению и реализации нелинейных волновых явлений в твёрдых телах обусловлен тем, что локализованная волна – солитон намагниченности – может быть использована в качестве единичного переносчика информации [2, 57–60 и др.]. Они длительное время выступают предметом теоретического и экспериментального изучения, прежде всего в материалах с обменным взаимодействием, прорабатываются их технологические приложения для создания спиновых вентилей и спиновых транзисторов.

Нелинейные волновые явления занимают важное место в задачах магноники [2]. В периодических структурах «ферромагнетик-сверхпроводник» под воздействием СВЧ-излучения легко возбуждаются одиночные и взаимодействующие магнитостатические моды, огибающие которых описываются нелинейными уравнениями Шрёдингера. Наличие этих волн, а также их длина, зависящая от толщины слоёв, определяет установление равновесной намагниченности сверхрешётки и интенсивность спинового транспорта (рис. 1.3) [61, 62]. Поведение спиновых волн описывается моделью распространения света в брэгговской оптической решётке [63].

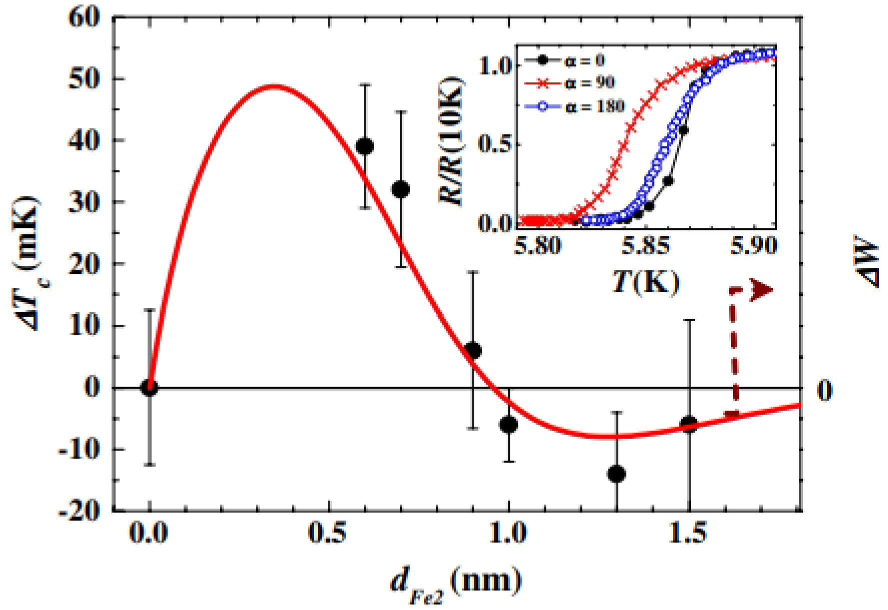


Рис. 1.3. Зависимость эффективности спинового вентиля, определяемая по разнице температуры сверхпроводящего перехода при параллельной и антипараллельной ориентации слоёв Fe от их толщины в гетероструктуре CoO/Fe/Cu/Fe/Pb [62]

Соответственно, следует ожидать реализации ряда типов нелинейных волн: щелевых солитонов, групповая скорость которых крайне мала, стационарных волн, а также солитонов, локализованных в пространстве на масштабе длины, соответствующей постоянной созданной в системе сверхрешётки. Данные предположения подтверждаются как численным моделированием [2, 63], так и экспериментальными работами [64]. Изучается также влияние дефектов на распространение волн намагниченности [65, 66] и спиновый транспорт в системах, обладающих пространственной модуляцией параметров, например, ширины волновода, в многослойных джозефсоновских контактах [67–72]. Реализация сверхрешёточной структуры приводит к изменению дисперсионного соотношения и появлению дополнительных запрещённых зон в спектре, изменению конфигурации и свойств основного состояния магнетика (рис. 1.4) [73–75].

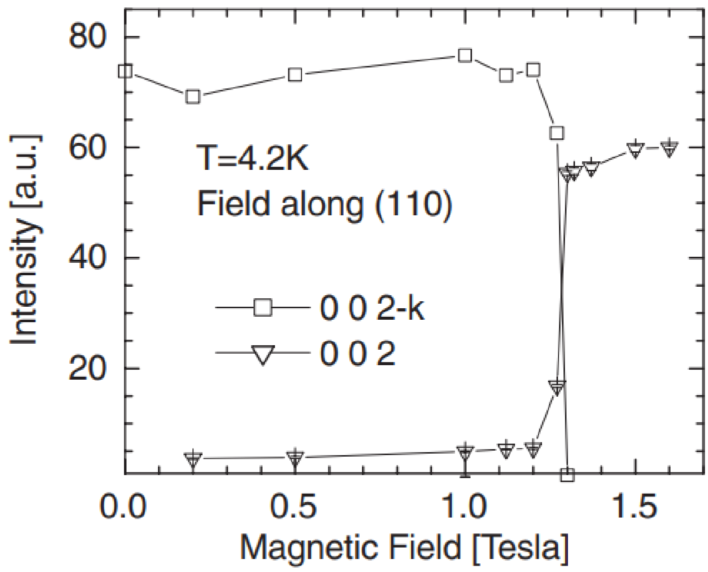


Рис. 1.4. Интенсивность нейтронной дифракции в CuB_2O_4 при изменении магнитного поля: при низких температурах и слабых внешних полях в материале спонтанно формируются спиновые солитоны и геликоидальные состояния, обусловленные взаимодействием Дзялошинского–Мория [73]

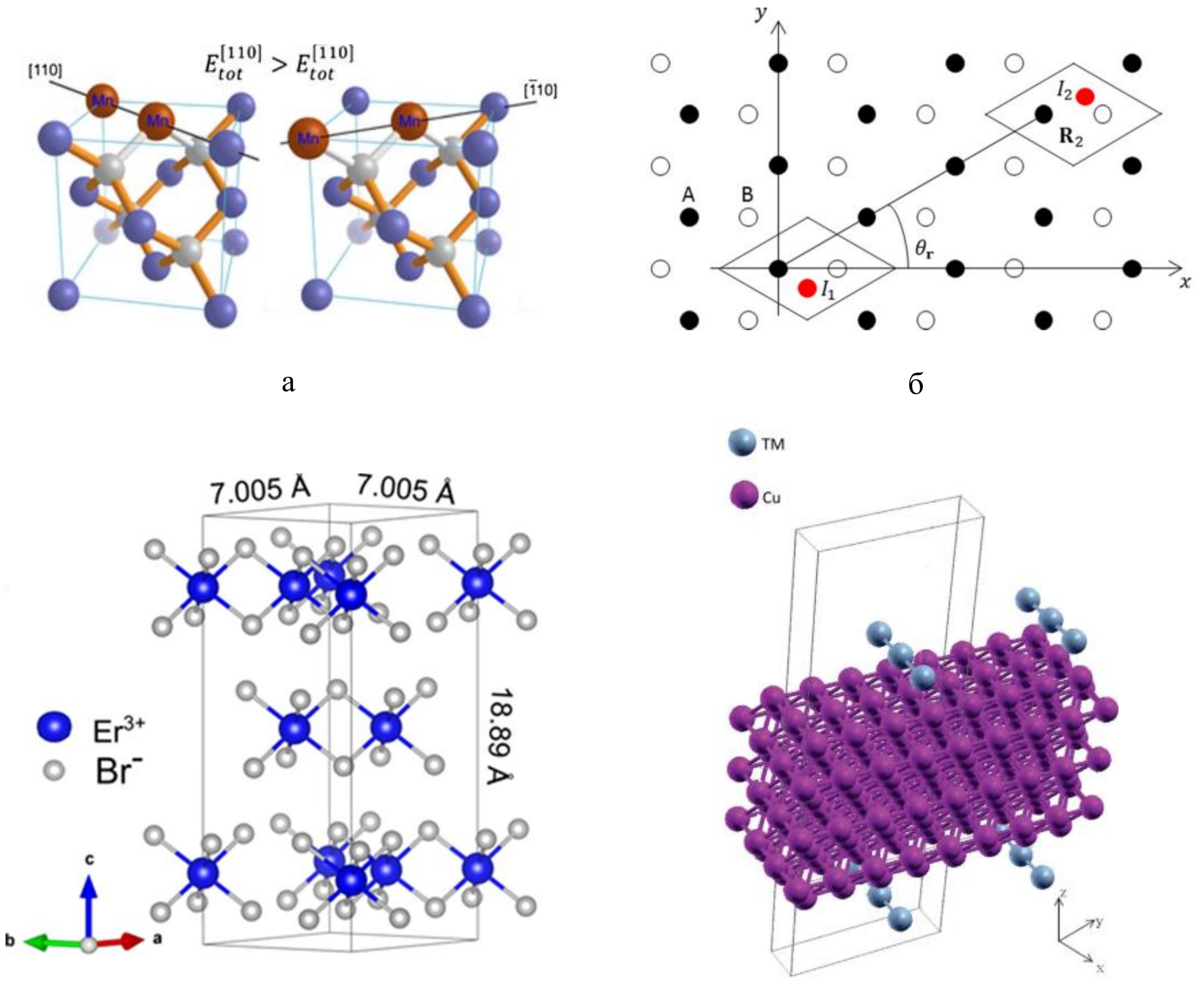
В истории и современном изучении магнитных явлений значительное место занимают исследования тонких и ультратонких плёнок магнетиков, а также гетероструктур на их основе [9, 76]. Именно для тонких плёнок было обнаружено явление гигантского магнетосопротивления, на их базе разработаны компактные системы магнитной записи и считывания информации. Работы по совершенствованию последних и повышению плотности записи продолжаются и сегодня [8, 77–79]. Малая толщина плёнок и высокая анизотропия взаимодействия в них обеспечивает быстроту перемагничивания [80, 81], возможность сравнительно лёгкого контроля намагниченности посредством приложенных токов [82–84], смещением доменных стенок [85] или изменением поляризации сопряжённого магнитомягкого слоя в спиновом вентиле [11–15, 86, 87]. Помимо этого, в ультратонких плёнках имеют место наноразмерные магнитные эффекты. Величина магнетосопротивления эффективно контролируется нанесением покрытий на поверхности плёнки, созданием механических напряжений, контролем шероховатости поверхности, локальным нагревом и др. [88–92].

Противоположный рассмотренному выше класс материалов и магнитных композитов – это структуры, где обменное взаимодействие не является доминирующим. Большинство систем со слабым магнитным взаимодействием (дипольным, косвенным обменным типа РККИ и др.) в первом приближении ведут себя как типичные парамагнетики [27, 28]. Их равновесная намагниченность при различной величине приложенного поля и температуре даётся функциями Бриллюэна, отвечающими конкретной величине спина. Магниторезонансный отклик таких систем включает прежде всего переходы с ларморовской частотой [93]. Взаимодействия в дипольных и разбавленных системах имеют интенсивность порядка единиц и долей процента от характерной энергии Зеемана, но приводят к широкому комплексу разнообразных эффектов, которые успешно регистрируются в экспериментах [28, 93, 94].

Прежде всего, при регистрации магнитного резонанса проявляется уширение и расщепление основной спектральной линии, отвечающей ларморовской частоте. Величина уширения пропорциональна относительной интенсивности взаимодействия, корректируется обменными эффектами и беспорядком в системе [93–95]. В энергии дипольного взаимодействия существует два основных вклада. Секулярный член энергии коммутирует с оператором энергии Зеемана, и отвечает в первую очередь за сдвиг резонансной частоты и уширение главной линии спектра. Оставшиеся слагаемые, не коммутирующие с зеемановской энергией – несекулярная часть дипольного взаимодействия – создают нелинейные, прежде всего квадратичные вклады в уравнения спиновой динамики. Их действие приводит к возникновению в ЯМР спектре магнитного резонанса слабых пиков на частотах вблизи нуля и удвоенной ларморовской, генерации высших кратных гармоник. Амплитуда не превышает квадрата отношения энергии взаимодействия к энергии Зеемана, и во многих случаях вкладами несекулярных членов можно пренебречь, хотя они тоже несут информацию об особенностях взаимодействий в материале [96, 97].

Процессы, связанные с коллективной спиновой динамикой, характерны не только для магнитоупорядоченных веществ с высокой плотностью расположения магнитных моментов и энергией взаимодействия. Они проявляются и регистрируются в разреженных неупорядоченных материалах [3], концентрированных системах с чисто дипольными взаимодействиями, например, ядерных парамагнетиках [98], системах со свободными радикалами, разбавленных магнитных полупроводниках и диэлектриках – с большими средними расстояниями между магнитными центрами [99–101], соединениях редкоземельных элементов ($GdCl_3$, EuO) [102–104], двухкомпонентных магнетиках – ансамблях магнитных ионов и (или) спиновых кластеров, адсорбированных на парамагнитных подложках (H, N, F на поверхности C; Mn, Cr, V на поверхности Cu) или внедрённых в кристаллические решётки ($(Cr_{1-x}Fe_x)_2B$, $Gd_{1.90}Co_{0.10}O_{3-\delta}$ и др.) [105–111], системах типа «спиновая лестница», купратах и др (рис. 1.5).

Перечисленные выше системы объединяются в класс низкотемпературных парамагнетиков [112]. В них имеет комбинация дипольного и косвенного обменного взаимодействия (РККИ), величина которых при обычных условиях исключает возможность реализации упорядоченного состояния и спиновых волн, поскольку они будут разрушаться тепловыми флуктуациями. Поэтому низкотемпературный парамагнетик остаётся в неупорядоченном состоянии до температур, близких к 0 К. Однако в сильном внешнем магнитном поле коллективные моды могут быть введены как отклонения от состояния насыщения, наведённого внешним полем.



а б в г

Рис. 1.5. Структура некоторых низкотемпературных парамагнетиков: а) – димеры Mn в элементарных ячейках GaAs [3]; б) – функционализированный (допированный) магнитной примесью графен [107]; в) – элементарная ячейка $ErBr_3$ [104]; г) – ионы переходного металла на (001) поверхности меди [108].

В работах [98, 113, 114] построены разложения уравнений динамики намагниченности по степеням параметра дипольного взаимодействия, которые предсказывают возможность наблюдения солитонов в плотном дипольно-связанном парамагнетике. В пренебрежении несекулярным членом оператора взаимодействия найдены дисперсионные соотношения и уравнения для огибающих на примере вещества с простой кубической решёткой. В [115, 116] показана возможность применения спин-волнового формализма к описанию динамики дипольной системы ядерных спинов и прогнозированию её свойств при низких температурах. С учетом рассеяния коллективных спиновых возбуждений рассчитаны ширина и форма линии ЯМР, величина стационарной спиновой поляризации и термодинамические характеристики дипольной системы. Ядерное «АФМ»-упорядочение в CaF_2 и LiF достигается экспериментально методом адиабатического размагничивания [117–119].

В [120, 121] описана коллективная динамика спиновых мод в дипольном парамагнетике, взаимодействующих с фононными модами. Показано, что формализм квазичастиц позволяет описывать свойства спиновых флуктуаций и спиновую диффузию в условиях низких температур и высокой равновесной поляризации решётки (т.е. вблизи состояния насыщения). Зеемановская и спиновая температуры выравниваются, что приводит к усилению спин-фононных взаимодействий и возникновению акустического спинового резонанса. Взаимодействие флуктуаций намагниченности в электронной и ядерной спиновой системах приводит к реализации особого класса состояний – ядерных спиновых волн, характерных для соединений $MnCO_3$, $CsMnF_3$ и др. [122, 123].

В работе [124] реализовано описание динамики намагниченности, линейных и нелинейных спиновых волн в дипольной системе, описанной в [98], но с применением более общего метода многих масштабов [125]. Кроме того, при выполнении расчётов использовался полный оператор дипольного взаимодействия без пренебрежения несекулярными членами. Оказалось, что последние оказывают выраженное влияние на устойчивость волновых процессов, ограничивая возможные направления распространения парамагнитных солитонов относительно кристаллической решётки, тогда как при учёте только секулярной части взаимодействия такой эффект не выявляется. Последовательное построение уравнений спиновой динамики с помощью метода многих масштабов позволило также выстроить чёткую иерархию динамических процессов в парамагнетике, реализующихся на различных временных масштабах: первая поправка к однородной ларморовской прецессии определяет дипольное уширение спектральных линий, чему отвечают характерные времена поперечной релаксации T_2, а последующие поправки определяют крупномасштабные бегущие волны намагниченности и солитоны с временами процессов T_2^2, T_2^3.

Важной особенностью моделей коллективных волновых процессов, как в низкотемпературных парамагнетиках, так и в обменных материалах выступает возможность сравнительно простого расчёта явлений спиновой декогеренции, которые являются значимым препятствием на пути разработки новых систем передачи и хранения информации, а также квантовых компьютеров [126–135]. Намагниченность спиновой системы в коллективном режиме рассчитывается как прямая суперпозиция вкладов отдельных спиновых волн с близкими, но различными частотами. В результате наложения различные моды ослабляют влияние друг друга в суммарном сигнале намагниченности. Такой процесс спиновой декогеренции реализуется даже в условиях, когда термодинамическая релаксация пренебрежимо мала. Соответствующий ему спад намагниченности на больших временах (много бо́льших T_2) происходит по степенному закону, что соответствует известным сведениям об эволюции спин-спиновых корреляций и процессе спиновой диффузии, по крайней мере, в одномерных системах и неупорядоченных ансамблях NV-центров в алмазах.

Важно, что данный механизм затухания поперечной намагниченности удаётся описать без введения эмпирических параметров в уравнениях спиновой динамики. Эволюцию намагниченности удаётся описать из первых принципов и, потенциально, получить оценки параметров релаксации в моделях типа Ландау–Лифшица–Гильберта [94, 136–138]. Спиновая декогеренция в описываемом подходе полностью описывается моделями, основанными на микроскопических уравнениях эволюции решёточных и коллективных операторов намагниченности, для системы, гамильтониан которой содержит только зеемановскую энергию и парное взаимодействие. Эта возможность для дипольных систем продемонстрирована в работах ряда авторов [139–148].

Остаются не до конца проанализированными процессы хаотизации динамики магнитных моментов в классических и квантовых дипольных системах. Численно найдено, что в системах из более чем четырёх частиц, реализуются положительные показатели Ляпунова [149, 150]. В [151–154] прямым моделированием динамики конечных систем диполей (цепочек, квадратных решёток) показано, что в этих системах возможны квазипериодические колебания намагниченности, оценены условия возникновения стохастического резонанса.

Сравнение квазиклассической модели спиновой динамики дипольной системы и спин-волновой модели низкотемпературного парамагнетика [148], построенной на базе формализма Холстейна–Примакова [115, 155–159], даёт прямое соответствие между характерными особенностями спектра (уширением и сдвигом резонансной линии), и соответствующими временными характеристиками спада поперечной намагниченности, рассчитанными в рамках обоих подходов. Помимо этого, подход на основе коллективных мод даёт эффективное описание систем низкой размерности – кольцевого кластера [160], одномерной цепочки [161–163]. Совместное применение квантовых и классических моделей успешно верифицирует эти независимые подходы, поскольку обеспечивает возможность сопоставить результаты численного моделирования с известными экспериментальными и статистическими данными [139–141, 164].

1.2. Коллективные явления в двухкомпонентных магнетиках

Двухкомпонентные низкотемпературные парамагнетики представляют значительный прикладной интерес, поскольку допускают потенциальную возможность активного управления намагниченностью приложением к ним электрических и магнитных полей, поскольку магнитное упорядочение в примесной подсистеме, в которой имеет место косвенное обменное взаимодействие, в значительной мере определяемое функцией плотности электронных состояний. Широкий класс двухкомпонентных магнетиков составляют разбавленные магнитные полупроводники (РМП) Одним из наиболее подробно изученных РМП является арсенид галлия GaAs, допированный марганцем Mn. Ионы марганца распределяются в объёме полупроводника случайным образом или осаждаются на его поверхности. Несмотря на это, они способны сформировать устойчивое ферромагнитное состояние даже при комнатной температуре [3, 165, 166] Хотя в подавляющем большинстве случаев полное упорядочение спиновых моментов в РМП имеет место только при температурах порядка кипения жидкого азота и ниже ввиду малой энергии парного взаимодействия независимо от её природы, будь то диполь-дипольная энергия или РККИ-обменное взаимодействие. Существование устойчивого упорядочения в таких системах обусловливает ряд уникальных явлений и возможностей, ценных для приложений. В РМП типа $Ga_{1-x}Mn_xAs$ имеет место сравнительно сильное (порядка десятков и сотен мэВ) косвенное обменное взаимодействие [3].

На сегодня разработано множество контролируемых технологий синтеза РМП, что обусловливает интенсификацию исследований в данной области. В частности, синтез производится с помощью лазерной и молекулярно-лучевой эпитаксии, осаждения атомных слоёв, осаждения из газовой фазы и др. [167, 168]. Все разработанные методы обеспечивают высокое качество РМП и контроль концентрации магнитных ионов. Высокая растворимость Mn в полупроводниках даёт хорошую равномерность распределения магнитных центров в синтезируемом материале.

Намагниченность синтезированного материала может контролироваться различными способами. В различных работах указывается, что значимую роль играет локализация носителей заряда в полупроводнике

[169–171]. Существенны перколяционные эффекты – при невысокой концентрации примеси упорядочение не происходит [172, 173]. Отмечается, что устойчивость и анизотропия ферромагнитного состояния в тонких плёнках РМП управляется изменением плотности состояния носителей заряда (дырок) и механическими напряжениями в материале [174–177]. С другой стороны, поскольку упорядочение обеспечивается носителями заряда, существует возможность его контроля электрическим полем, как это имеет место для характеристик спиновых волн, вплоть до инверсии намагниченности системы [178–184]. Наконец, в ряде исследований показана чувствительность намагниченности гетероструктур и сверхрешёток на базе РМП к свету [185–187]. Всё это в совокупности даёт дополнительные пути для управления спиновыми волнами и равновесной намагниченностью материалов.

С другой стороны, при легировании возможно и формирование тесных магнитных кластеров, слабо связанных между собой. Их возникновение приводит к большой интенсивности взаимодействия примесных ионов. В ряде работ [188, 189] показано, что наиболее значительный вклад в намагниченность РМП с низкой концентрацией магнитной примеси вносят тесные группы из двух и трёх атомов, поскольку вероятность их образования выше, чем более крупных кластеров. В результате такой композит описывается как смесь идеальных парамагнетиков различной концентрации, частицы которых имеют различный спин, соответствующий полному спину кластеров. Аналогичные эффекты проявляются в двумерных материалах, на поверхности которых осаждаются ионы переходных металлов. В них, как и в РМП, помимо прямого обмена, реализуется косвенное обменное взаимодействие, опосредованное носителями заряда [105–112]. РМП и гетероструктуры на основе их комбинации с ферромагнитными материалами перспективны для реализации быстрых и экономичных электронных устройств, поскольку для них возможно эффективно контролировать проводимость и другие параметры носителей заряда с помощью внешнего поля [190–192].

Помимо того, низкоразмерные системы, состоящие из компактных магнитных кластеров, представляют интерес с точки зрения реализации и управления явлением сверхпроводимости. Так, хорошо известно, что низкоразмерные, прежде всего, димерные структуры типа «спиновой лестницы» наблюдаются в перспективных материалах для получения высокотемпературной сверхпроводимости – различных купратах ($KCuF_3$, La_2CuO_4), а также в ряде материалов с преобладанием одно- и двумерной структуры в распределении различных ионов ($CuGeO_3$, $SrCu_2O_3$) [110, 111, 193]. Главные уникальные свойства этих композитов определяются магнитными димерами – тесными парами ионов, которые в сумме могут иметь как нулевой, так и ненулевой полный спин, в отличие от единичных атомов. Переходы между разными квантовыми состояниями димеров определяют серию плато на кривой намагничивания, в отличие от монотонных кривых функций Ланжевена и Бриллюэна [194].

Перечисленные материалы имеют регулярную микроскопическую структуру. Системы, где атомные кластеры распределены неравномерно, могут быть описаны подходами теории спиновых стёкол [195]. В этом случае величина взаимодействия и, соответственно, энергетические уровни различных кластеров, являются случайными величинами, что определяет сложную структуру основного состояния всей системы с реализацией магнитных фрустраций [196]. Значимой особенностью кластерных, и, в частности, димерных систем выступает явление метамагнетизма. Оно наблюдается как резкий рост намагниченности от около нулевых значений до насыщения при достижении внешним магнитным полем величины, близкой к кристаллическому среднему полю [194]. Этот магнитный фазовый переход наряду с существованием серии плато намагниченности, возникающих при увеличении поля, впервые найден в модели АФМ-цепочки [197, 198].

Известно много различных материалов со схожими свойствами, например, $CsCuC_3$, $Cu(NO_3)_2 \cdot 2.5H_2O$, $SrCu_2(BO_3)_2$ [112, 194, 199], $NiCl_3C_6H_5(CH_2)_2NH_3$ [200], $NaCu_2VP_2O_{10}$ [201, 202] и др. На рис. 1.6 в качестве примера приведены кривые намагничивания $SrCu_2(BO_3)_2$. Аналогичное поведение проявляют некоторые композиты на основе d- и f-элементов [194, 201–204]. Присутствие случайного фактора в энергии связи димеров, например, варьирование их размера, приводит к «размыванию» магнитных фазовых переходов. В целом, кластерные структуры представляют интерес для перспективных компонентов спинтроники, контролируемых магнитным полем [2, 66, 205].

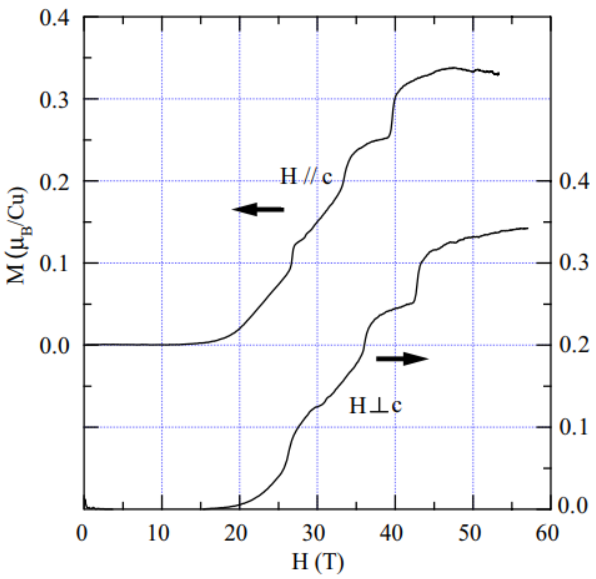


Рис. 1.6. Реализация серии плато намагниченности в $SrCu_2(BO_3)_2$ при варьировании магнитного поля; зависимость определяется комбинацией между обменным взаимодействием внутри димеров, образованных ионами Cu, и взаимодействием отдельных димеров [199]

В работе [206] рассмотрены равновесные состояния ансамбля димеров со случайной энергией связи в магнитном поле. В приближении невзаимодействующих димеров не взаимодействуют между собой вычислена равновесная намагниченности и статическая продольная восприимчивость композита, и найдено, что вклады пар ионов с разным знаком энергии связи приводят к изменению критического поля, соответствующего состоянию насыщения, а также суммарной величине равновесной намагниченности. В том числе реализуется немагнитная фаза при переходе большой части димеров в синглетные квантовые состояния с нулевым полным спином. В ходе работы над данной тематикой реализован численный алгоритм построения энергетических спектров спинового кластера, основанный на прямом построении квантово-механических операторов [207]. Найдено, что немагнитные состояния реализуются также и в разнообразных решёточных моделях с конкурирующими знаками взаимодействия [208–210]. Случайный характер взаимодействия в рассмотренной системе определяет уширение границ существования состояний (парамагнитного, насыщения и немагнитного), пропорциональное дисперсии энергии взаимодействия внутри отдельных кластеров.

В [211–214] приведены результаты исследования волновых режимов двухкомпонентных низкотемпературных парамагнетиков, состоящих из ферромагнитной примеси в парамагнитной решётке, дано описание спиновых волн и солитонов намагниченности, с оценками характерных длин волн и скорости движения. Характерные длины огибающих устойчивых волновых мод отвечают среднему расстоянию между примесными ионами. Найденные скорости перемещения солитонов намагниченности в примесной подсистеме композита малы, и по оценкам составляют доли мкм/с. Это затрудняет их использование для непосредственной передачи информации, однако допускает возможность создания ячеек кратковременной памяти и определяет большое время жизни найденных состояний.

Подобные явления имеют место не только в двухкомпонентных композитах, но и в полупроводниках, основная решётка которых является диамагнитной, чистых или легированных немагнитными примесями полупроводниках [215–219]. Спиновые процессы в полупроводниках определяются разнообразными механизмами. Доминирующими являются спин-орбитальное взаимодействие, контактное взаимодействие с ионами решётки, обменное взаимодействие носителей заряда.

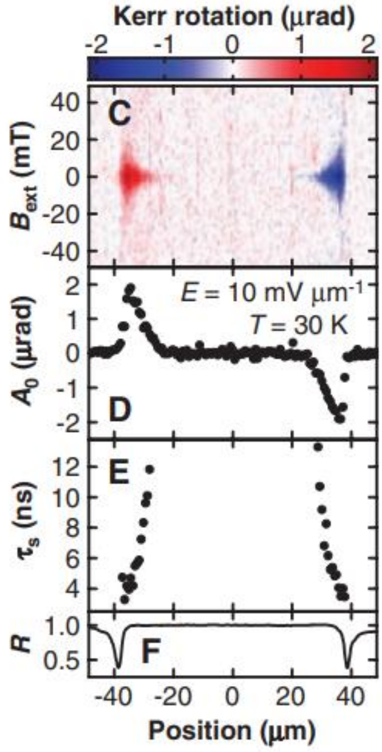


Рис. 1.7. Наблюдение спинового эффекта Холла в образце GaAs шириной 77 мкм и толщиной 2.3 мкм при облучении лазером с длиной волны 825 нм и мощностью 130 мкВт. Верхнее изображение (панель C) показывает величину эффекта Керра и его усиление к границам образца при варьировании приложенного магнитного поля, что свидетельствует о концентрации на них носителей заряда с противоположно направленными спинами; ниже показаны: D – амплитуда эффекта Керра; E – время жизни спинового состояния; F – коэффициент отражения GaAs [229].

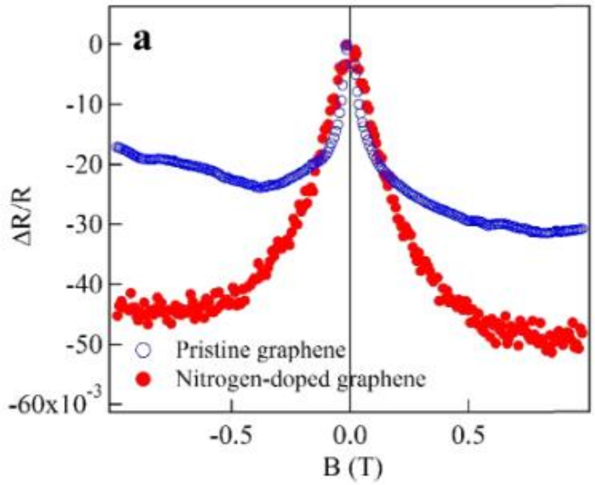
Известна возможность оптического ориентирования спина электронов проводимости в Ge и Si, щелочных металлах (Rb, Cs), что обнаруживается по взаимодействию с фононами [220–223], переориентации электронных и ядерных спиновых моменты у атомов элементов, не подверженных оптическому излучению, путём спинового обмена вплоть до установления гиперполяризованного состояния [224–227]. Реализация прямого и обратного спинового эффекта Холла связана со взаимным влиянием электрического и спинового токов. Прямой эффект основан на асимметрии рассеяния электронов в решётке при наложении магнитного поля. Носители заряда с противоположными спинами, будут рассеиваться преимущественно в противоположных направлениях благодаря спин-орбитальному взаимодействию [228, 229]. Спиновый эффект Холла экспериментально подтверждён, в частности, в тонких плёнках GaAs, ZnSe (рис. 1.7) [230–232]. Обратный спиновый эффект Холла состоит в генерации в материале электрического тока, пропорционального намагниченности. Он также наблюдается в GaAs [233]. В некоторых материалах к появлению электрического тока приводит оптическое ориентирование [234, 235].

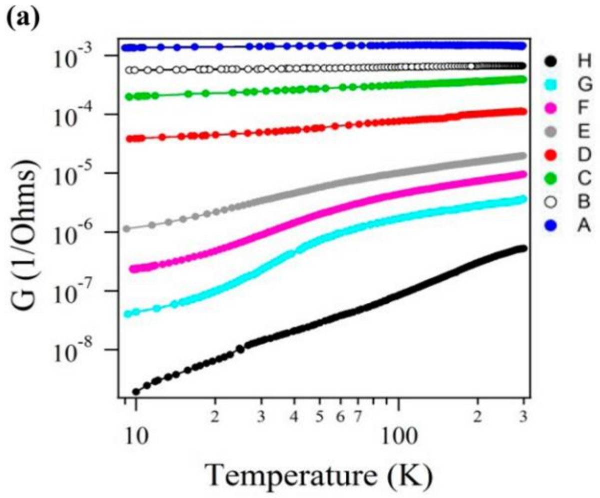
Процесс спинового обмена играет значительную роль в свойствах молекулярных магнитов, методе спиновых меток ЭПР, химических реакциях и процессах катализа, оказывает прямое влияние на стабильность кубитов для перспективных систем квантовых вычислений [236]. Спиновый обмен позволяет также непосредственно определить частоту и скорости молекулярных столкновений по анализу сдвигов, уширения и асимметрии линий ЭПР-спектров. Показано, что в обменных и дипольных системах реализуются коллективные моды переноса спиновой когерентности между компонентами системы, отвечающими различным собственным частотам в спектре ЭПР – спиновые поляритоны, формируемые поперечными компонентами намагниченностей спинов в системе [237–239].

Противоположным процессом, который препятствует распространению спиновых токов, является спиновая релаксация. Она обусловливается широким спектром различных механизмов, например, электрон-фононным и спин-орбитальным взаимодействием, влиянием примесей, дефектов в кристаллической решётке, контактным взаимодействием Ферми в проводящих материалах и др. [28, 93–95]. Рост интенсивности взаимодействий или наличие беспорядка в большинстве случаев обусловливает ускорение спиновой релаксации [240, 241]. Внешнее магнитное поле, напротив, обычно стабилизирует систему и увеличивает время релаксации, хотя в ряде систем наблюдается и обратный эффект [242–244]. В целом за процесс магнитной релаксации отвечает присутствие в решётке стационарных или нестационарных эффективных магнитных полей, которые имеют случайную величину. В результате возникают хаотические фазовые сдвиги в прецессии отдельных спиновых моментов примесных ионов, возрастает вероятность переворота спина свободных электронов, участвующих в спиновом токе, и поляризация спадает до нуля пропорционально скорости затухания спиновых корреляций [240].

Спиновый ток в полупроводниковых материалах эффективно подавляется обменным взаимодействием электронов, дырок и примесных магнитных ионов. Соответственно, этот механизм существенно зависит от концентрации примеси [245, 246]. Важной прикладной задачей на сегодняшний день остаётся создание материалов, релаксация в которых замедлена или подавлена до такой степени, что они устойчиво передают спиновый ток при высоких температурах вплоть до комнатных, для чего предлагаются различные подходы – захват примесными парамагнитными центрами с низкими энергетическими уровнями [247], применение квантовых точек, обладающих дискретной структурой спектра [248, 249].

Свойства, аналогичные РМП и низкотемпературным парамагнетикам, проявляют металл-углеродные композиты на основе графена, фуллеренов и нанотрубок. Одним из наиболее ярких и примеров такой системы является графан – монослой углерода, допированный атомами водорода. Для него теоретически и экспериментально показано, что в различных условиях материал, стабилизированный осаждением на проводящую подложку, способен проявлять ферромагнетизм и антиферромагнетизм [82, 250], а также проявлять выраженное магнетосопротивление. Аналогичные эффекты реализуются при азотировании и фторировании монослоя углерода [251–254]. Описывается потенциальная возможность синтеза графона – монослоя графена, допированного водородом только с одной стороны [255], и предполагается, что он способен к ФМ-упорядочению благодаря РККИ-взаимодействию, и допускает реализацию спиновых волн [155] с характерными частотами в области ГГц и ТГц.





а б

Рис. 1.8. Влияние функционализации графена на транспортные характеристики: *а* – относительная величина магнетосопротивления, измеренная для чистого и азотированного графена; б – измеренная температурная зависимость проводимости образцов чистого (A), дегазированного (B), и фторированного графена после последовательных циклов функционализации (C–H); для материалов после 1–2 циклов (C, D) сохраняются металлические свойства, однако проводимость постепенно падает, и после 7 циклов (H) степенное возрастание проводимости с температурой свидетельствует о переходе материала в состояние полупроводника с прыжковой проводимостью [251, 252]

В то время как чистый монослой углерода является полуметаллом с нулевой шириной запрещённой зоны, осаждение или интеркалирование на нём H, F, N и других элементов (в литературе эти процессы часто объединены термином «функционализация») приводит к появлению запрещённой зоны, и материал превращается в магниточувствительный полупроводник (рис. 1.8) [253–256]. Изучению этих систем посвящено обширное число теоретических исследований, поскольку в функционализированном графене реализуется аналог РККИ-взаимодействия [111, 259–268]. Случайное распределение примесных ионов позволяет применить здесь также теорию спиновых стёкол. Работает она также и для неупорядоченного композита на основе оксида графена [269, 270]. Вместе с тем в чисто двумерной системе, когда магнитная примесь адсорбирована на большой площади листа графена или графита, связанные со случайностью параметров эффекты нивелируются, и наблюдается ускорение спиновой релаксации магнитной подсистемы [271, 272]. Это и позволяет в целом рассматривать систему как ансамбль независимых магнитных кластеров малой размерности, предельным случаем которого является разреженный ансамбль димеров. Их случайный размер, и, как следствие, случайное значение энергии взаимодействия фактически добавляет ещё одну степень свободы в систему, и его описание не представляет затруднений с точки зрения фундаментальных принципов статистической теории.

Усиление взаимодействия в разреженных материалах обеспечивает также возможность реализации нелинейных эффектов. Для дипольной системы важно, что определяющей является относительная, а не абсолютная величина дипольного взаимодействия, и поэтому, в случае достаточно низких температур, возможно ожидать усиления генерации кратных гармоник в спектре и нелинейных волн просто при ослаблении внешнего поля, которое задаёт однородное упорядочение в спиновой системе.

Прямое вычисление и анализ особенностей формирования спектра магнитного резонанса в разреженных или неупорядоченных спиновых системах также остаётся актуальной проблемой как с прикладной, так и с фундаментальной точки зрения. Отсутствие дальнего порядка не позволяет эффективно использовать традиционные термодинамические подходы. С другой стороны, возможно прямое численное моделирование динамики намагниченности [141, 142, 148]. В работах [273–277] предложен и апробирован метод квантовомеханических эволюционных расчётов, основанный на осреднении сигналов намагниченности низкоразмерного кластера магнитных центров, рассчитанных для большого числа случайных конфигураций. Полное моделирование крупного комплекса атомов, например, органической молекулы, требует специальных подходов с выделением наиболее значимых вкладов собственных состояний, а также существенных вычислительных ресурсов [278].

1.3. Коллективная динамика и магнетизм электронов

Электронная подсистема в металлах, полупроводниках и углеродных материалах, проявляя коллективное поведение, определяет специфические свойства тех или иных веществ по отношению к взаимодействию с ними электромагнитных волн и статических полей [19, 27, 28, 34, 279, 280]. В частности, электронный газ в металлах и тонких плёнках проявляет особый тип коллективных возбуждений – плазмоны и поляритоны, соответственно – элементарные кванты плазменных колебаний и связанные состояния плазмонов и фотонов [281, 282]. Исследователями отдельно выделяются поверхностные плазмоны (или плазмон-поляритоны) как отдельный класс квазичастиц со своими особенностями, поскольку они распространяются на границе проводников и представляют комбинацию колебаний как электронного газа внутри металла, так и электромагнитных волн во внешней области [283–285]. В первую очередь ими определяются оптические свойства разнообразных материалов. Описание свойств плазмонов, вычисление сечений рассеяния и поглощения электромагнитного излучения во многих случаях доступно в рамках классической электродинамики и физики плазмы.

Существенный интерес представляет исследование плазмонных возбуждений на металлических наночастицах и атомных или молекулярных кластерах малой размерности. Для них экспериментально и теоретически показано, что плазменная частота, и, соответственно, пики поглощения и отражения напрямую зависят от характерного размера частиц и их элементного состава. Это даёт возможность реализации чувствительных оптических детекторов различных веществ и детекторов поверхностных электрических зарядов [286, 287].

Металлические нанокластеры проявляют нетипичные высокие значения статической поляризации по сравнению с классической оценкой для проводящей сферы, что обусловлено усилением влияния электронов проводимости на малом масштабе [288]. В динамическом отклике оно также выражено. Для моделирования и аналитических расчётов используются различные модели, среди которых наиболее простой и в то же время эффективной является т.н. «модель желе», которая описывает динамику электронов проводимости в металлах в приближении постоянной средней положительного заряда ионного остова [289]. Однако для наноразмерных систем точность результатов этой модели снижается благодаря перераспределению электронов к поверхности и «выходу» электронного облака за пределы ионного остова. Это приводит к экранированию внешнего поля и его изменению во внутренней части кластера, что модифицирует динамическую восприимчивость и поляризацию системы [290–292].

Прямое вычисление эффективного поля, обусловленного поляризацией классической частицы, приводит к однозначному разделению коллективной динамики электронов на поверхностные и объёмные плазмоны, частоты которых соответствуют классической плазменной [280, 292], тогда как в случае наноразмерной металлической структуры собственные частоты в значительной мере определяются функцией электронной плотности основного квантового состояния системы. В случае простой геометрии она может быть получена приближёнными аналитическими вычислениями (методы Хартри–Фока, уравнения Томаса–Ферми), а в более общих случаях применимо численное решение с использованием уравнений Коша–Шема и аналогичных подходов [293–297]. Альтернативным подходом к описанию коллективных колебаний электронов является гидродинамическая теория [298–301], в рамках которой рассматриваются малые колебания электронной плотности над основным состоянием.

Другим аспектом коллективного поведения электронов в проводниках и полупроводниках являются их магнитные свойства, также тесно связанные с энергетическими спектрами и плотностью электронных состояний [5, 6, 27–29, 33, 302–305]. Их изучение ведётся, начиная фактически с развития теории металлов Друде, теории диа- и парамагнетизма ван Флека, уровней Ландау, и останавливаясь, на сегодняшний день, на особенностях физических свойств двумерных материалов и компактных наноструктур. Существенной сложностью для анализа в данной области выступает кулоновское взаимодействие электронов, которое медленно убывает на больших расстояниях и вообще имеет величину, сопоставимую с собственными энергетическими уровнями рассматриваемых систем, создавая таким образом сильно коррелированные электронные состояния.

Значительные успехи в этом направлении достигнуты на базе теории Ферми-жидкости и методов среднего поля [6, 29, 34, 305]. Возможность её применения обеспечивается явлением экранировки – коллективное поведение электронов в проводнике таково, что кулоновское взаимодействие заменяется короткодействующим с потенциалом типа Юкавы. Но во многих материалах и структурах реализуются ситуации, когда основное состояние Ферми-жидкости оказывается неустойчивым. К этому приводит электрон-фононное взаимодействие с реализацией эффективного притяжения электронов [306], сильные локальные взаимодействия электронов [5] или нестинг поверхности Ферми [307]. В двумерных материалах типа графена реализован новый механизм разрушения состояния Ферми-жидкости, обусловленный линейным дисперсионным соотношением, и, соответственно, нулевой эффективной массой электронов [102, 308, 309].

С другой стороны, анализ основных свойств компактных кластеров и наноструктур может быть произведён на основе сравнительно простых математических моделей. К примеру, квантовые точки во многих экспериментальных реализациях вполне достоверно описываются приближением сферически симметричной прямоугольной потенциальной ямы или сферического гармонического осциллятора [310–313]. Они имеют дискретный энергетический спектр, качественно подобный атомному, и в то же время включают в себя большое число частиц, порядка 10^3–10^6. Для низкоразмерных кластеров, например, C_{60}, C_{70}, металлических сферических структур [314–317] удаётся реализовать прямой расчёт на базе модели Хаббарда, подходов квантовой химии. В случае большого числа частиц, например, для углеродных нанотрубок, многослойных углеродных оболочек [253, 253, 304], система решёточных уравнений для электронных операторов становится чрезвычайно громоздкой, однако эту проблему удаётся разрешить применением классических и квазиклассических подходов с использованием приближения сплошной среды [318–320]. В частности, для однослойной и многослойной сферической углеродной оболочки, имеющей диаметр 2–5 нм, и, соответственно, число узлов в решётке порядка 10^3–10^4, удаётся построить волновые функции электронов в виде разложения по сферическим гармоникам и легко найти их энергетический спектр, который в таком приближении, хотя и является дискретным, но количественно и качественно близок к спектру графена [321, 322], а также рассчитать характерную форму кривой оптического поглощения [323], полевые и температурные зависимости равновесной намагниченности и восприимчивости [324].

1.4. Заключение

Совокупный анализ исследований и публикаций по коллективным явлениям в конденсированных средах показывает, в первую очередь, их глубокую теоретическую проработку на базе классических методов и подходов квантовой механики, квантовой теории поля. Они дают строгий и обоснованный подход к описанию различных взаимодействующих подсистем, например, носителей заряда в полупроводниках и магнитных примесей, внедрённых в решётку, начиная от квазиклассических моделей и завершая методами вторичного квантования и квантовой теории поля [28–34, 58, 94, 132–143]. Многие результаты имеют надёжные экспериментальные подтверждения и конкретные возможные приложения.

Развитие современной экспериментальной техники приводит к практической реализации мезоскопических систем, включающих, с одной стороны, относительно малое число атомов для обеспечения типичных условий применимости термодинамического осреднения, а с другой – сравнительно большое, так что проблемы описания наноразмерных структур лежат также и за рамками одночастичных задач квантовой механики и теории возмущений. Однако многие исследования показывают, что в таких случаях достоверные результаты могут быть получены уже с применением различных квазиклассических подходов. Задачи спиновой динамики уверенно моделируются решёточными уравнениями типа Блоха. Для электронной динамики в наноматериалах и низкоразмерных системах типа фуллеренов, несмотря на возможность записи полной модели Хаббарда для всех узлов решётки, надёжное описание даётся методами ВКБ-приближения, приближением среднего поля.

Альтернативным универсальным подходом выступает реализация приближения сплошной среды для описания микроскопической динамики различных структур. Конечно, переход к пределу сплошной среды приводит к качественному упрощению квантово-механических моделей. Но если речь идёт о крупномасштабных макро- или мезоскопических образцах исследуемых материалов, динамика отдельных частиц и единичных элементарных возбуждений, начиная с некоторого масштаба, становится несущественной, и наибольшую роль играют уже осреднённые эффекты. В этом случае появляется возможность достоверно прогнозировать основные наблюдаемые явления и особенности свойств разнообразных магнитных материалов на базе относительно простых, но, в то же время, физически обоснованных динамических моделей, получаемых предельными переходами из уравнений Гейзенберга для эволюции решёточных и полевых операторов. Разработка таких моделей и последующий анализ свойств магнетиков, магнитных полупроводников и углеродных композитов и является фундаментальной целью настоящей работы.

Применение к коллективным явлениям в конденсированных средах подходов, основанных на моделях сплошной среды, даёт широкие возможности для анализа и моделирования нелинейных динамических явлений в электронных и спиновых ансамблях, что обусловливается развитыми методами теории нелинейных колебаний и волн, хаотической динамики, синхронизации и др. [90, 325–331]. Уравнения спиновой динамики в обобщённом виде для систем с прямым, непрямым обменом, дипольной связью и иными типами взаимодействия приобретают такую же структуру, как подробно исследованное нелинейное уравнение Шрёдингера. Аналогичные результаты получаются и в ходе описания волн электронной плотности. Ансамбль магнитных ионов во внешнем поле может рассматриваться как ансамбль связанных осцилляторов, и к описанию явлений, наблюдаемых на различных масштабах в конденсированных средах, применимы подходы нелинейной динамики.

Реализуемый в настоящей работе подход, основанных на осреднении решёточных уравнений Гейзенберга для спиновых и электронных операторов даёт модели динамики микроскопической и интегральной намагниченности системы, которые позволяют определить природу различных вкладов в спиновую динамику, получить оценку феноменологических параметров из первых принципов.

Глава 2. Нелинейные волны намагниченности в низкотемпературных парамагнетиках

В данной главе рассматриваются волновые процессы вблизи состояния насыщения в низкотемпературном парамагнетике с дипольным взаимодействием, с учётом его секулярной и несекулярной составляющей. Показано, что различие их симметрии существенно влияет на устойчивость волн и солитонов в спиновой системе. Применение метода многих масштабов для анализа уравнений эволюции намагниченности позволило выстроить иерархию динамических явлений в парамагнетике в приближении сплошной среды, реализация которых происходит на различных характерных временах. В рамках единого подхода описываются дипольное уширение спектральных линий (время T_2), формирование кратных гармоник вдали от ларморовской частоты (T_2^2) и развитие крупномасштабных возмущений локальной намагниченности и солитонов (T_2^2, T_2^3).

2.1. Уравнения эволюции намагниченности

2.1.1. Уравнения Гейзенберга для операторов спиновых отклонений

Рассматривается парамагнитная кристаллическая решётка, помещённая в сильное постоянное однородное магнитное поле и пребывающая вблизи состояния насыщения намагниченности. Предполагается, что магнитные моменты расположены в неподвижных узлах решётки и могут свободно ориентироваться в любом направлении. Микроскопическая структура системы не предполагает наличия предпочтительных осей или плоскостей ориентации магнитных моментов, которые связаны между собой только дипольным взаимодействием.

Рассмотрим детальнее спиновый гамильтониан парамагнетика. Он может быть разбит на сумму двух слагаемых, описывающих внешнее поле и дипольное взаимодействие [28, 93, 94]:

$$\hat{H} = \hat{H}_Z + \hat{H}_{dd}. \quad (2.1)$$

Первое слагаемое – это зеемановская энергия спинов во внешнем магнитном поле (здесь и далее, если не оговорено отдельно, используется система единиц, в которой $\hbar = 1$):

$$\hat{H}_Z = -\gamma \boldsymbol{H}_0 \cdot \sum_{j=1}^{N} \boldsymbol{S}_j, \quad (2.2)$$

где γ – гиромагнитное отношение ионов решётки, $\boldsymbol{S}_j$ – оператор спинового момента на данном узле, N – полное число частиц, образующих систему, а индекс j нумерует все узлы кристаллической решётки. Будем предполагать, что постоянное внешнее поле, наличие которое обусловливает упорядочение магнитных моментов и приближение системы к основному состоянию, является однородным в пределах рассматриваемого кристалла.

Второе слагаемое в (2.1) – это гамильтониан дипольного взаимодействия. Он может быть представлен в виде [139]

$$\hat{H}_{dd} = \frac{\gamma^2}{2} \sum_{j \neq k} \left(\frac{\delta_{\alpha\beta}}{r_{jk}^3} - \frac{3 r_{jk}^{\alpha} r_{jk}^{\beta}}{r_{jk}^5} \right) S_j^{\alpha} S_j^{\beta}, \quad (2.3)$$

где латинские индексы нумеруют отдельные узлы решётки, а греческие обозначают компоненты трёхмерных векторов; $\boldsymbol{r}_{jk}$ – радиус-вектор, между узлами j и k, $\delta_{\alpha\beta}$ – символ Кронекера. Известно, что гамильтониан (2.3) может быть представлен в виде суммы секулярной (компоненты, коммутирующей с оператором Зеемана) и несекулярной частей:

$$\hat{H}_{dd} = \hat{H}_{dd}^{s} + \hat{H}_{dd}^{n}, \quad (2.4)$$

$$\hat{H}_{dd}^{s} = \frac{\gamma^2}{2} \sum_{j \neq k} a_{jk} \left(S_j^z S_k^z - \frac{1}{4} \left(S_j^+ S_k^- + S_j^- S_k^+ \right) \right), \quad (2.5)$$

$$\hat{H}_{dd}^{n} = \frac{\gamma^2}{2} \sum_{j \neq k} \left(b_{jk} S_j^+ S_k^+ + 2 c_{jk} S_j^+ S_k^z + h.c. \right), \quad (2.6)$$

где введены коэффициенты

$$a_{jk} = \frac{1 - 3\cos^2\theta_{jk}}{r_{jk}^3}, \quad b_{jk} = -\frac{3}{4} \frac{\sin^2\theta_{jk}}{r_{jk}^3} \mathrm{e}^{-2i\varphi_{jk}}, \quad c_{jk} = -\frac{3}{2} \frac{\sin\theta_{jk} \cos\theta_{jk}}{r_{jk}^3} \mathrm{e}^{-i\varphi_{jk}}, \quad (2.7)$$

здесь θ_{jk} – угол между векторами $\boldsymbol{H}_0$ и $\boldsymbol{r}_{jk}$, φ_{jk} – азимутальный угол для вектора $\boldsymbol{r}_{jk}$ (рис. 2.1, *а*); аббревиатура *h.c.* обозначает эрмитово сопряжение предшествующих операторов; $S^{\pm} = S^x \pm iS^y$ – циклические компоненты оператора спина.

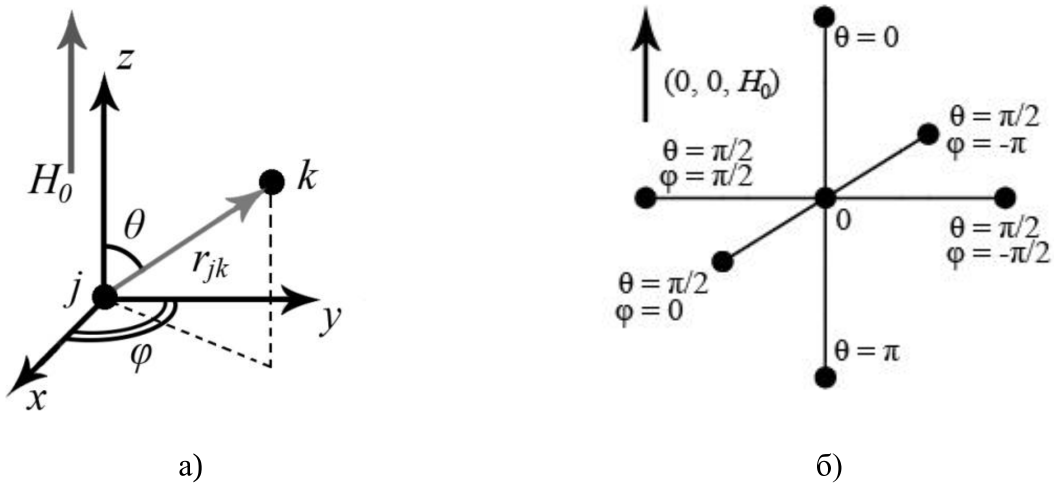


Рис. 2.1. К геометрическим соотношениям: а) – локальная сферическая система координат для пары узлов решётки j и k, магнитное поле задаёт ось z; б) – положения первых ближайших соседей в простой кубической решётке

Наиболее простой для анализа конфигурацией трёхмерной решётки является простая кубическая. В частности, при ориентировании поля вдоль кристаллографической оси *[100]* для первых ближайших соседей конкретного узла автоматически становятся равными нулю коэффициенты c_{jk}, т.к. полярный угол θ_{jk} принимает значения 0 (узлы на оси z) или $\pm\pi / 2$ (узлы в плоскости xy, рис. 2.1, *б*). Аналогичные упрощения выстраиваются и при реализации иных конфигураций поля $\boldsymbol{H}_0$ – вдоль диагонали грани (ось *[110]*) и вдоль главной диагонали элементарной ячейки (ось *[111]*).

Известно, что вклад несекулярной части гамильтониана в динамику отдельных спиновых моментов в решётке мал по отношению к секулярной части и тем более – к зеемановской энергии, поэтому в первом приближении по интенсивности дипольного взаимодействия ими можно пренебречь [93]. Тем не менее, в настоящей работе несекулярная часть учтена, поскольку она обладает иной симметрией по сравнению с зеемановской и секулярной частью гамильтониана.

Для построения модели коллективной динамики намагниченности системы на узлах решётки вводятся операторы спиновых отклонений посредством преобразования Дайсона–Малеева [116, 332, 333]:

$$\hat{S}_j^+ \approx \sqrt{2S}\beta_j, \quad \hat{S}_j^- \approx \sqrt{2S}\beta_j^\dagger\left(1-\frac{\beta_j^\dagger\beta_j}{2S}\right), \quad \hat{S}_j^z = S-\beta_j^\dagger\beta_j, \tag{2.8}$$

где S – абсолютная величина спина, n_j – оператор числа спиновых отклонений на узле j; он определяет, насколько магнитный момент отклонился от оси z; уменьшение проекции спина поля S^z на единицу приводит к увеличению собственного числа оператора n_j, которое меняется в пределах от 0 до $2S+1$, тогда как S^z – от $-S$ до $+S$; $\beta^\dagger$ и β – бозевские операторы рождения и уничтожения спиновых отклонений, действующие на узлах решётки, которые удовлетворяют коммутационным соотношениям

$$\left[\beta_j,\beta_k^\dagger\right]_- = \delta_{jk}, \quad \left[\beta_j,\beta_k\right]_- = \left[\beta_j^\dagger,\beta_k^\dagger\right]_- = 0. \tag{2.9}$$

Для определённости далее принято, что рассматриваемый кристалл обладает простой кубической решёткой с постоянной a_0. Ребра элементарной кубической ячейки ориентированы вдоль осей координат, что даёт $c_{jk}=0$. Тем не менее, все представленные ниже результаты могут быть расширены и на другие конфигурации кристаллических решёток, в том числе двумерные и одномерные системы.

Спиновый гамильтониан парамагнетика, нормированный на энергию Зеемана, после преобразования (2.8) и нормализации принимает вид:

$$\begin{gathered}\frac{\hat{H}}{\hbar\omega_0} \approx \sum_j \beta_j^\dagger\beta_j - \\ -\frac{p_d}{2}\sum_{j\neq k} a_{jk}\left(2S\beta_j^\dagger\beta_j + S\beta_j^\dagger\beta_k - \left(\beta_j^\dagger\beta_k^\dagger\beta_j\beta_k + \frac{1}{2}\beta_j^\dagger\beta_j^\dagger\beta_j\beta_k\right)\right) - \\ -Sp_d\sum_{j\neq k}\left(b_{jk}\beta_j\beta_k + b_{jk}^*\beta_j^\dagger\beta_k^\dagger\right),\end{gathered} \tag{2.10}$$

где $\omega_0 = \gamma H_0$ – ларморовская частота, $p_d = \hbar\gamma S / \omega_0 a_0^3$ – безразмерный параметр интенсивности дипольного взаимодействия. Здесь опущены постоянные слагаемые, которые не вносят вклада в динамику системы.

Уравнения, описывающие эволюцию относящихся к узлу решётки $\mathbf{r}_q$ операторов β_q, $\beta_q^\dagger$ и $\beta_q^\dagger\beta_q$ в общем виде даются соответствующими Гейзенберга, в которые входит гамильтониан (2.10):

$$i\frac{d\hat{A}_p}{dt} = \left[\hat{A}, \hat{H}\right]. \tag{2.11}$$

Последовательно вычисляя входящие в него коммутаторы с учётом (2.9), получим явный вид уравнения для β_q:

$$\begin{aligned} i\frac{d\beta_q}{dt} &= \beta_q\left(1 - \frac{Sp_d}{2}\frac{N}{V}\left(\frac{4\pi}{3} - 4\pi N_z\right)\right) - \frac{p_d}{2}\sum_{q\neq j} a_{pj}\left(2S\beta_q + S\beta_j\right) - \\ &- 2Sp_d\sum_{q\neq j} b_{qj}^*\beta_j^\dagger + \frac{p_d}{2}\sum_{q\neq j} a_{qj}\left(2\beta_j^\dagger\beta_j\beta_q + \beta_q^\dagger\beta_q\beta_j\right), \end{aligned} \tag{2.12}$$

время здесь измеряется в единицах обратной ларморовской частоты ω_0^{-1} с учётом размагничивающего фактора. Согласно принципу соответствия и определению операторов (2.8), такое уравнение описывает также и локальную поперечную намагниченность.

Уравнение для $\beta_q^\dagger$ получается эрмитовым сопряжением (2.12), а уравнение для эволюции оператора числа спиновых отклонений $\hat{n}_q = \beta_q^\dagger\beta_q$ – комбинацией двух уравнений для одиночных операторов рождения и уничтожения:

$$\begin{aligned} i\frac{d\beta_q^\dagger\beta_q}{dt} &= i\frac{d\beta_q^\dagger}{dt}\beta_q + i\beta_q^\dagger\frac{d\beta_q}{dt}, \\ i\frac{d\beta_q^\dagger\beta_q}{dt} &= \frac{Sp_d}{2}\sum_{q\neq j} a_{pj}\left(\beta_j^\dagger\beta_q - \beta_q^\dagger\beta_j\right) + Sp_d\sum_{q\neq j}\left(b_{qj}\beta_q\beta_j + b_{qj}^*\beta_q^\dagger\beta_j^\dagger\right), \end{aligned} \tag{2.13}$$

В системе сохранены слагаемые не выше кубических, что определяется использованным преобразованием (2.8).

2.1.2. Приближение сплошной среды

Уравнения (2.12), (2.13) допускают переход к сплошной среде, что позволяет исключить необходимость анализа системы решёточных уравнений высокой размерности. Для этого операторы спиновых отклонений рассматриваются как непрерывные функции. Если длины волн намагниченности много больше постоянной решётки ($ka_0 \ll 1$), для операторов на узлах, соседних с q, применимо разложение [327]:

$$\beta_j = \beta_q \pm a_0 \frac{\partial \beta_q}{\partial x} + \frac{a_0^2}{2} \frac{\partial^2 \beta_q}{\partial x^2} + \ldots \tag{2.14}$$

Это позволяет записать систему нелинейных уравнений для намагниченности кристалла. При подстановке разложений в (2.12) и (2.13) в слагаемых, отвечающих узлам, расположенным симметрично относительно q, первые производные сокращаются, вторые – удваиваются, и решёточная модель преобразуется к системе уравнений типа Шрёдингера для полевых операторов β. Первые слагаемые в (2.14) также либо сокращаются с β_q, либо комбинируются с ним, определяя сдвиг основной частоты прецессии магнитного момента на данном узле. Вклад дальнодействия может быть учтён как сдвиг ларморовской частоты.

Поскольку оператор β_q соответствует циклической компоненте намагниченности, вещественная и мнимая части (2.12) определяют соответственно уравнения динамики поперечных компонент M^x и M^y. В приближении взаимодействия ближайших соседей они выглядят следующим образом:

$$\begin{aligned} \frac{\partial M^x}{\partial t} &= M^y - \frac{Sp_d}{2} \hat{Q}^{+} M^y - p_d \left(M^z \hat{L} M^y - M^y \hat{L} M^z \right), \\ \frac{\partial M^y}{\partial t} &= -M^x + \frac{Sp_d}{2} \hat{Q}^{-} M^x + p_d \left(M^z \hat{L} M^x - M^x \hat{L} M^z \right), \end{aligned} \tag{2.15}$$

где введены дифференциальные операторы второго порядка:

$$\hat{L} = \Delta - 3\frac{\partial^2}{\partial z^2}, \qquad \hat{D} = \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{\partial^2}{\partial y^2}, \qquad \hat{Q}^{\pm} = \hat{L} \pm 3\hat{D}, \tag{2.16}$$

а масштаб времени нормирован на ларморовскую частоту с учётом размагничивающего дипольного поля. Точная структура (2.16) задаётся направлением внешнего поля относительно кристаллической решётки и числом учтённых координационных сфер. Все длины и производные отмасштабированы на a_0. Оператор $\hat{L}$ описывает секулярную часть дипольного взаимодействия, $\hat{D}$ – несекулярную. Обозначение $\hat{Q}^{\pm}$ введено для сокращения записи уравнений.

Для продольной компоненты намагниченности (отклонения её от насыщения) получается уравнение, не содержащее линейных членов:

$$\frac{\partial M^z}{\partial t} = Sp_d\left(M^x \hat{Q}^- M^y - M^y \hat{Q}^+ M^x\right). \tag{2.17}$$

В пренебрежении несекулярной частью дипольного взаимодействия модель (2.15)–(2.17) соответствует квазиклассическим уравнениям эволюции намагниченности, построенным в работах [98, 113, 114].

Полученная система уравнений может быть представлена также в виде уравнения прецессии вектора локальной намагниченности посредством введения эффективного магнитного поля:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}, \tag{2.18}$$

где $\mathbf{H}_{eff}$ – суперпозиция внешнего магнитного поля и внутреннего среднего поля спиновой системы. Выведенная в настоящей работе модель динамики намагниченности не может быть сформулирована непосредственно в таком же виде с единым эффективным полем. Это связано с асимметрией несекулярных членов дипольного гамильтониана. Их вклад, тем не менее, возможно переписать в виде добавочного поля другой структуры:

$$
\begin{gathered}
\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \mathbf{\Gamma} \cdot (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) + \mathbf{\Gamma}_{ns} \cdot (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{ns}), \\
\mathbf{M} = \left\{ M^x, M^y, \frac{1}{2} + M^z \right\}, \\
\mathbf{H}_{eff} = \left\{ p_d \hat{L} M^x, p_d \hat{L} M^y, 1 + p_d \hat{L} M^z \right\}, \\
\mathbf{H}_{ns} = \left\{ 3 p_d \hat{D} M^x, -3 p_d \hat{D} M^y, 0 \right\},
\end{gathered} \tag{2.19}
$$

где

$$
\mathbf{\Gamma} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & S \end{pmatrix}, \qquad \mathbf{\Gamma}_{ns} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & S \end{pmatrix}.
$$

Различие в знаках *x*- и *y*-компонент эффективных полей, а также центрального элемента матриц **Г** и $\mathbf{Г}_{\mathrm{ns}}$ определяется анизотропией несекулярных слагаемых.

Полученные уравнения динамики намагниченности парамагнетика в приближении сплошной среды описывают локальное состояние спиновой системы. Они получены напрямую из микроскопического подхода, благодаря чему модель не включает каких-либо эмпирических параметров, кроме параметра интенсивности взаимодействия и гиромагнитного отношения ионов решётки.

2.2. Метод многих масштабов. Решения младших порядков

2.2.1. Преобразование производных

В предельном случае, когда взаимодействие отсутствует (т.е. $p_d = 0$), модель (2.15)–(2.17) преобразуется к уравнениям движения магнитного момента в однородном постоянном поле:

$$
\frac{\partial M^x}{\partial t} = M^y, \qquad \frac{\partial M^y}{\partial t} = -M^x, \qquad \frac{\partial M^z}{\partial t} = 0, \tag{2.20}
$$

и описывает прецессию намагниченности вокруг направления внешнего поля, однородную по всему объёму решётки. В спектре сигнала присутствует только ларморовская частота:

$$M^x = ae^{it} + c.c., \qquad M^y = iae^{it} + c.c., \qquad M^z = b = const. \tag{2.21}$$

Малая величина параметра взаимодействия p_d позволяет применять для исследования динамики намагниченности разнообразные методы теории возмущений. К примеру, в работах [98, 113] применяется преобразование Гарднера–Морикавы, основанное на разложении по медленному времени и бегущей волне:

$$\mathbf{M} = \sum_{m=-\infty}^{m=+\infty} \sum_{\alpha=1}^{\infty} \varepsilon^{\alpha} \mathbf{M}_{\alpha}(\varepsilon\eta, \varepsilon^2 t) e^{im(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)}, \quad \eta = \mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \Omega(\mathbf{k})t, \tag{2.22}$$

в роли малого параметра ε здесь выступает амплитуда возмущения равновесного состояния. В [98] показано, что при описании динамики намагниченности в высших порядках существенны только слагаемые с $m = \pm 1$. Данный подход, однако, имеет ограничение для общего случая, поскольку он сразу подразумевает получение нелинейного уравнения Шредингера и задаёт фиксированные масштабы медленного времени и растянутой координаты. Это преобразование отвечает свойствам симметрии параболического уравнения, и не позволяет поэтому более детально выстроить иерархию решений в различных порядках разложения.

В настоящей работе для описания динамики намагниченности использован обобщённый метод многих масштабов [125]. В качестве базового решения в системе без взаимодействия используется плоская бегущая волна с частотой ω и волновым вектором $\mathbf{k}$:

$$M^x = M^x e^{i\theta}, \quad M^y = M^y e^{i\theta}, \quad M^z = const, \quad \theta = \omega t - \mathbf{k}\cdot\mathbf{r}. \tag{2.23}$$

Предполагается, для этой волны существует разложение амплитуд по степеням малого параметра:

$$\mathbf{M} = \sum_{n=0}^{\infty} p_d^n \mathbf{M}_n(\theta, \mathbf{X}_1, T_1, T_2, T_3, \ldots), \tag{2.24}$$

где введены медленные времена T_n и растянутая координата $\mathbf{X}_1$:

$$
\begin{gathered}
\mathbf{X}_1 = p_d \mathbf{r}, \qquad T_n = p_d^n t, \\
\theta = \frac{\zeta(\mathbf{X}_1, T_1)}{p_d}, \qquad \omega = \frac{\partial \zeta}{\partial T_1} = 1, \qquad \mathbf{k} = -\nabla_1 \zeta,
\end{gathered} \tag{2.25}
$$

оператор ∇_1 обозначает дифференцирование по растянутым координатам $\mathbf{X}_1$; $\omega = 1$, т.к. время перемасштабировано на обратную ларморовскую частоту. Введена только одна растянутая пространственная координата с опорой на результаты работ [98, 113, 114], где показана ключевая роль учёта именно различных масштабов времени.

С учётом описанных подстановок, производные в (2.15)–(2.17) преобразуются следующим образом:

$$
\begin{gathered}
\frac{\partial}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \theta} + p_d \frac{\partial}{\partial T_1} + p_d^2 \frac{\partial}{\partial T_2} + \ldots, \\
\Delta = k^2 \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} - p_d \operatorname{div}\mathbf{k} \frac{\partial}{\partial \theta} - 2 p_d \mathbf{k} \cdot \nabla_1 \frac{\partial}{\partial \theta} + p_d^2 \Delta_1.
\end{gathered} \tag{2.26}
$$

2.2.2. Нулевой порядок разложения

В нулевом порядке разложения по p_d реализуются уравнения (2.20) с решением (2.23). Амплитуды компонент вектора намагниченности теперь зависят от медленных времён и координаты:

$$
\begin{gathered}
M^x = a(\mathbf{X}_1, T_1, T_2, \ldots) e^{i\theta} + c.c., \quad M^y = ic(\mathbf{X}_1, T_1, T_2, \ldots) e^{i\theta} + c.c., \\
M^z = b(\mathbf{X}_1, T_1, T_2, \ldots).
\end{gathered} \tag{2.27}
$$

Поперечным компонентам намагниченности M^x, M^y заданы различные амплитуды a, c для обеспечения корректного учёта несекулярного члена гамильтониана взаимодействия.

2.2.3. Первый порядок разложения

В первом порядке разложения вековые члены уравнений, имеющие в составе множители $e^{\pm i\theta}$, задают систему для амплитуд компонент намагниченности:

$$
\begin{aligned}
\frac{\partial b}{\partial T_1} &= 6iS(k_x^2 - k_y^2)(a^* c - a c^*), \\
\frac{\partial a}{\partial T_1} &= \frac{iS}{2}\Big((k^2 - 3k_z^2)(1+2b) + 3(k_x^2 - k_y^2)\Big)c, \\
\frac{\partial c}{\partial T_1} &= \frac{iS}{2}\Big((k^2 - 3k_z^2)(1+2b) - 3(k_x^2 - k_y^2)\Big)a.
\end{aligned} \tag{2.28}
$$

В общем случае эта система уравнений допускает только численное исследование. Однако в приближении малого отклонения продольной намагниченности от насыщения (т.е. $2b \ll 1$) она преобразуется к линейной системе ОДУ для поперечных компонент:

$$
\frac{\partial a}{\partial T_1} \approx iP^+ c, \quad \frac{\partial c}{\partial T_1} \approx iP^- a, \tag{2.29}
$$

где определены числовые множители

$$
P^{\pm} = \frac{S}{2}\Big((k^2 - 3k_z^2) \pm 3(k_x^2 - k_y^2)\Big).
$$

Решение системы (2.29) строится обычным образом, и даёт поправки к собственной частоте прецессии магнитных моментов, определяемые волновым вектором **k**, при этом решение остаётся пространственно однородным:

$$
\begin{gathered}
a(T_1) = a e^{i\Omega T_1} + c.c., \quad c(T_1) = \sqrt{\frac{P^-}{P^+}} a e^{i\Omega T_1} + c.c., \\
\Omega^2 = P^+ P^- = \frac{S^2}{4}\Big((k^2 - 3k_z^2)^2 - 9(k_x^2 - k_y^2)^2\Big).
\end{gathered} \tag{2.30}
$$

Амплитуда a зависит теперь от $\mathbf{X}_1$ и времён следующих порядков малости $T_2, T_3, \ldots$. Видно, что в пренебрежении несекулярной частью дипольного взаимодействия множитель перед амплитудой a в выражении для c равен единице, и выполняется $a = c$, тогда как в общем случае это неверно.

Полная намагниченность принимает следующий вид:

$$
\begin{gathered}
M^x = a(\mathbf{X}_1, T_2, T_3, \ldots) e^{i(\theta + p_d \Omega t)} + c.c., \quad M^y = ic(\mathbf{X}_1, T_2, T_3, \ldots) e^{i(\theta + p_d \Omega t)} + c.c., \\
M^z = b(\mathbf{X}_1, T_2, T_3, \ldots).
\end{gathered} \tag{2.31}
$$

В системе по-прежнему реализуется ларморовская прецессия, однако частоты колебаний теперь имеют дипольные поправки и определяются начальной длиной волны (2.23).

В случае неоднородного начального распределения намагниченности кристалла можно построить решение как суперпозицию бегущих волн с различными **k**. Это соответствует возбуждению колебаний также с различными длинами волн. И каждое отдельное колебание имеет собственную поправку Ω к ларморовской частоте, согласно (2.30). Суммарная намагниченность среды будет включать непрерывный спектр колебаний с различными частотами Ω, и ширина полного спектра пропорциональна p_d. Таким образом, в первом порядке малости реализуется дипольное уширение спектральных линий, и это происходит однородно по всему объёму рассматриваемой системы.

Кроме вековых членов, ответственных в результате за уширение основной линии спектра, в системе уравнений благодаря нелинейности возникают слагаемые $e^{\pm 2i\theta}$ с удвоенными частотами. Медленная динамика продольной компоненты b обусловливает формирование сателлита вблизи нулевой частоты. В результате получается спектр (рис. 2.2), соответствующий экспериментальным данным и ожидаемым эффектам дипольного взаимодействия [93].

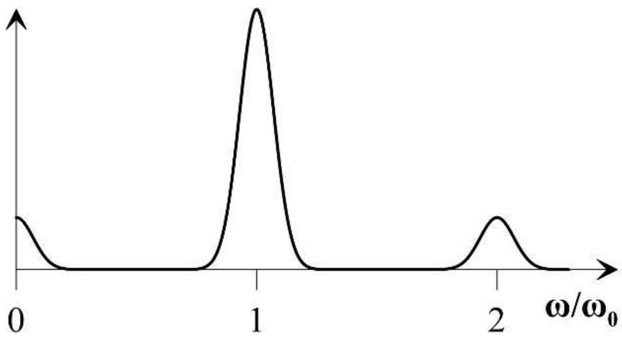


Рис. 2.2. Схематическое изображение спектра поглощения спиновой системы с дипольным взаимодействием

2.3. Нелинейные волны в дипольном парамагнетике

Во втором порядке разложения по дипольному параметру в уравнения для амплитуд намагниченности входят производные по $\mathbf{X}_1$, что определяет возможность пространственной неоднородности решения. Уравнения для амплитуд поправок a_1, b_1 и c_1 (поправка к намагниченности $\mathbf{M}_1$) подобны по структуре (2.28), поэтому соответствующие им слагаемые могут быть исключены без потери точности в данном порядке разложения – они будут вносить вклад в уширение спектральных линий.

Амплитуды a, b, c в предположении, что $\boldsymbol{k}$ не зависит от $\mathbf{X}_1$, описываются системой гиперболических уравнений первого порядка:

$$\begin{gathered}
\frac{\partial a}{\partial T_2} = -(S+2b)\left(\mathbf{k}\cdot\nabla_1 c - 3k_z\frac{\partial c}{\partial Z_1}\right) - 3S\left(k_x\frac{\partial c}{\partial X_1} - k_y\frac{\partial c}{\partial Y_1}\right) + c.c.,\\
\frac{\partial c}{\partial T_2} = -(S+2b)\left(\mathbf{k}\cdot\nabla_1 a - 3k_z\frac{\partial a}{\partial Z_1}\right) - 3S\left(k_x\frac{\partial a}{\partial X_1} - k_y\frac{\partial a}{\partial Y_1}\right) + c.c.,\\
\frac{\partial b}{\partial T_2} = 2S\left[a\left(\mathbf{k}\cdot\nabla_1 c^* - 3k_z\frac{\partial c^*}{\partial Z_1}\right) + c\left(\mathbf{k}\cdot\nabla_1 a^* - 3k_z\frac{\partial a^*}{\partial Z_1}\right)\right] -\\
-6S\left[a\left(k_x\frac{\partial c^*}{\partial X_1} - k_y\frac{\partial c^*}{\partial Y_1}\right) - c\left(k_x\frac{\partial a^*}{\partial X_1} - k_y\frac{\partial a^*}{\partial Y_1}\right)\right] + c.c.,
\end{gathered} \tag{2.32}$$

a^*, c^*, $c.c.$ обозначает комплексное сопряжение. Данные уравнения удобно проанализировать в частных случаях движения волн вдоль осей координат.

Например, простейшие по структуре устойчивые решения существуют при $k_x = k_y = 0$, $k_z = const$. Несекулярные члены в таком предположении автоматически исключаются из уравнений:

$$\begin{gathered}
\frac{\partial a}{\partial T_2} = 2(S+2b)k_z\frac{\partial c}{\partial Z_1} + c.c.,\\
\frac{\partial c}{\partial T_2} = 2(S+2b)k_z\frac{\partial a}{\partial Z_1} + c.c.,\\
\frac{\partial b}{\partial T_2} = 4Sk_z\left(a\frac{\partial c^*}{\partial Z_1} + c\frac{\partial a^*}{\partial Z_1}\right) + c.c.
\end{gathered} \tag{2.33}$$

Для поперечных компонент из (2.33) могут быть построены волновые уравнения второго порядка. Например, дифференцирование по времени первого уравнения с последующей подстановкой в него производных b и c даёт следующее:

$$\frac{\partial^2 a}{\partial T_2^2} = 4k^2(S+2b)^2\frac{\partial^2 a}{\partial Z_1^2} + 8k^2(S+2b)\frac{\partial a}{\partial Z_1}\frac{\partial b}{\partial Z_1} - \\ -16k^2 S\frac{\partial c}{\partial Z_1}\frac{\partial}{\partial Z_1}\left(ac^* + a^*c\right). \tag{2.34}$$

Это уравнение может быть дополнительно упрощено, если положить $a \approx c$ и $\partial b / \partial Z_1 \approx 0$ в силу более медленной динамики продольной намагниченности по сравнению с поперечными компонентами, как это следует из общих эмпирических и теоретических сведений [28, 93, 94]:

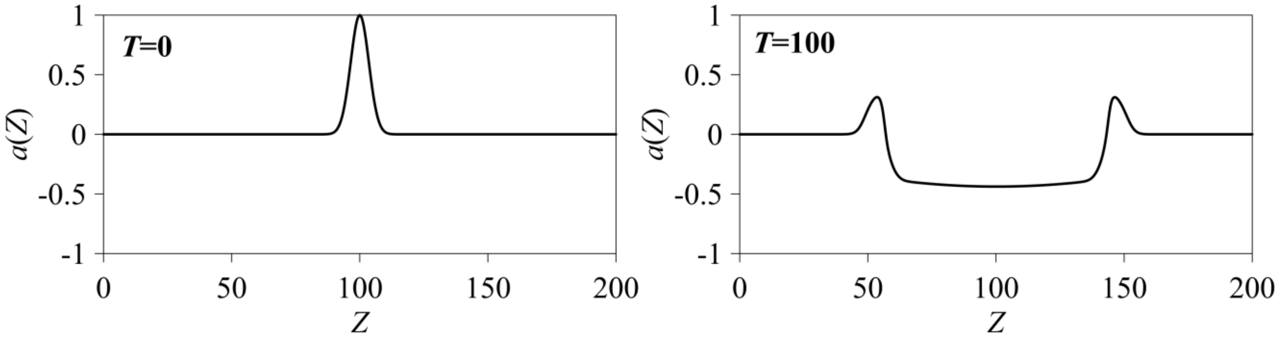
$$\frac{\partial^2 a}{\partial T_2^2} = 4k^2(S+2b)^2\frac{\partial^2 a}{\partial Z_1^2} - 32k^2 S\frac{\partial c}{\partial Z_1}\frac{\partial |a|^2}{\partial Z_1}. \tag{2.35}$$

Полученное уравнение допускает решение в виде монохроматической бегущей волны в растянутых координатах $a \propto e^{iKZ_1}$, движущейся вдоль внешнего магнитного поля. При этом нелинейное слагаемое равно нулю, поскольку квадрат модуля амплитуды бегущей волны, очевидно, является постоянной величиной. Частоты медленных волн определяются дисперсионным соотношением

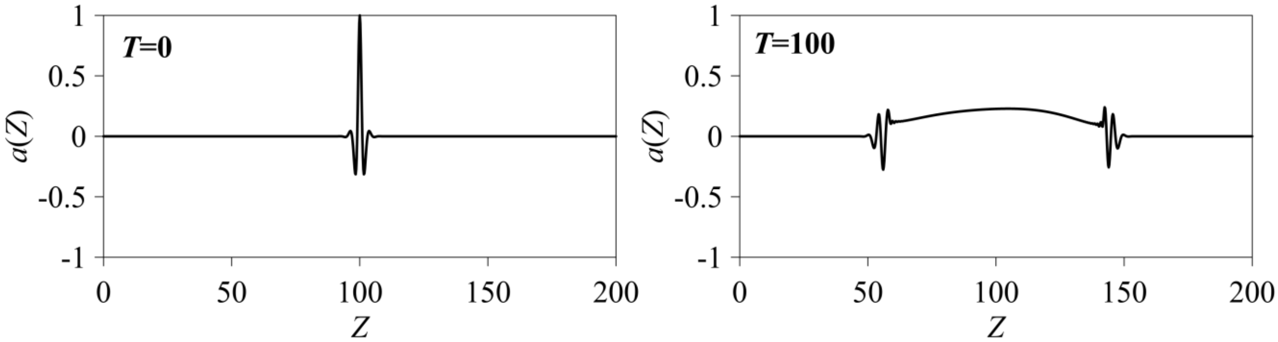
$$\Omega_2^2 = 4k^2(S+2b)^2K^2 \tag{2.36}$$

и вносят квадратичную по p_d поправку в спектр колебаний намагниченности, поэтому уширение наблюдаемых спектральных линий за счёт возникновения в системе бегущих волн пренебрежимо мало.

Численное решение уравнения (2.35) с негармоническими начальными условиями показывает, что возмущения намагниченности, распространяясь в среде, формируют в результате некоторое возмущение намагниченности с ещё бóльшими характерными временами эволюции (рис. 2.3). Это решение реализовано методом конечных разностей, выполненным с применением явной схемы на равномерной постоянной сетке. Алгоритм реализован на языке FORTRAN-90.



(а)



(б)

Рис. 2.3. Численное моделирование эволюции амплитуды поперечной намагниченности: а) – начальное состояние в виде гауссовой функции; б) – локализованный волновой пакет. Слева – начальные состояния, справа профили бегущей волны в момент $T_2 = 100$

При распространении волн в двумерной или трёхмерной решётке в плоскости xy (при $k_z = 0$) также реализуется уравнение, подобное (2.35). Однако благодаря вкладу несекулярных слагаемых оно становится эллиптическим, и устойчивых волновых решений, распространяющихся по кристаллу на большие расстояния, в этом случае не существует.

2.4. Парамагнитные солитоны

В третьем порядке разложения для компонент $\mathbf{M}_0$ получаются следующие уравнения:

$$
\begin{aligned}
\frac{\partial M^x}{\partial T_3} &= -\frac{S}{2}\hat{Q}^+ M^y - \left(M^z \hat{L} M^y - M^y \hat{L} M^z\right),\\
\frac{\partial M^y}{\partial T_3} &= \frac{S}{2}\hat{Q}^- M^x + \left(M^z \hat{L} M^x - M^x \hat{L} M^z\right),\\
\frac{\partial M^z}{\partial T_3} &= S\left(M^x \hat{Q}^- M^y - M^y \hat{Q}^+ M^x\right).
\end{aligned}
\tag{2.37}
$$

фигурирующие здесь операторы совпадают с введёнными в (2.16). Получившиеся уравнения практически полностью совпадают с исходной моделью (2.15)–(2.17), за исключением слагаемого, описывающего ларморовскую прецессию, и масштабных множителей, характеризующих интенсивность дипольного взаимодействия. Последние, однако, входят в уравнения неявно посредством масштаба времени T_3.

Полученная система включает также динамику продольной компоненты намагниченности, однако в случае малых отклонений от состояния насыщения преобразуется к паре нелинейных уравнений относительно поперечных компонент [98], поскольку абсолютная величина намагниченности M_S сохраняется:

$$
(M^x)^2 + (M^y)^2 + (M_S - M^z)^2 = M_S^2, \tag{2.38}
$$

и поэтому

$$
M^z \approx \frac{(M^x)^2 + (M^y)^2}{2M_S}. \tag{2.39}
$$

Это позволяет исключить M^z в первом и втором уравнениях. Полагая также, что зависимость M^z от координат более медленная, чем у M^x и M^y, дополнительно пренебрежём членами $\hat{L} M^z$.

В предыдущем порядке разложения было найдено, что устойчивы периодические волны намагниченности, распространяющиеся вдоль оси z. Поэтому будем искать решение в следующем виде:

$$
\begin{aligned}
M^x &= a(T_3, \mathbf{X}_1) e^{i(KZ_1 + \Omega_2 T_2 + \Omega T_1 + \theta)},\\
M^y &= ic(T_3, \mathbf{X}_1) e^{i(KZ_1 + \Omega_2 T_2 + \Omega T_1 + \theta)}.
\end{aligned}
\tag{2.40}
$$

Подстановка (2.40) в (2.37) приводит к системе двумерных уравнений типа Шрёдингера с кубической нелинейностью для амплитуд a и c:

$$i\frac{\partial a}{\partial T_3}=\frac{S}{2}\left(\frac{\partial^2 c}{\partial X_1^2}+\frac{\partial^2 c}{\partial Y_1^2}\right)+SK^2c+\frac{3S}{2}\left(\frac{\partial^2 c}{\partial X_1^2}-\frac{\partial^2 c}{\partial Y_1^2}\right)+\frac{K^2}{M_S}(|a|^2+|c|^2)c,$$
$$i\frac{\partial c}{\partial T_3}=\frac{S}{2}\left(\frac{\partial^2 a}{\partial X_1^2}+\frac{\partial^2 a}{\partial Y_1^2}\right)+SK^2a-\frac{3S}{2}\left(\frac{\partial^2 a}{\partial X_1^2}-\frac{\partial^2 a}{\partial Y_1^2}\right)+\frac{K^2}{M_S}(|a|^2+|c|^2)a. \quad (2.41)$$

Стандартная замена для уравнений этого класса

$$a=\varphi(\eta)e^{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}-sT_3)},\qquad c=\psi(\eta)e^{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}-sT_3)},\qquad \eta=\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}-UT_3,$$

где $\mathbf{R}$ – радиус-вектор в плоскости X_1Y_1, $\mathbf{q}=\{q_x,q_y\}$ – волновой вектор, s – фазовая скорость волны, а U – скорость огибающей, даёт уравнения для функций φ и ψ:

$$\frac{S}{2}(q^2+3\bar{q}^2)(\psi''-\psi)-s\varphi+\frac{K^2}{M_S}(|\varphi|^2+|\psi|^2)\psi=$$
$$=i(S((q_x+q_y)+3(q_x-q_y))\psi'+U\varphi'),$$
$$\frac{S}{2}(q^2+3\bar{q}^2)(\varphi''-\varphi)-s\psi+\frac{K^2}{M_S}(|\varphi|^2+|\psi|^2)\varphi=$$
$$=i(S((q_x+q_y)-3(q_x-q_y))\varphi'+U\psi'), \quad (2.42)$$

где $q^2=q_x^2+q_y^2$, $\bar{q}^2=q_x^2-q_y^2$.

Для получения вещественной огибающей необходимо исключить из системы слагаемые с мнимыми коэффициентами. В пренебрежении несекулярными слагаемыми это достигается при условии

$$U=qS\sqrt{1+\frac{2q_xq_y}{q^2}}. \quad (2.43)$$

Видно, что скорость волны является вещественной при любых значениях компонент вектора **q**.

Учёт несекулярных слагаемых изменяет условие существования вещественной огибающей. В этом случае скорость U даётся соотношением

$$U=2qS\sqrt{\frac{5q_xq_y}{q^2}-2}. \quad (2.44)$$

Область существования решений определяется неравенством $q^2 < q_x q_y / 2$, ограниченной на плоскости $q_x q_y$ прямыми $q_y = 2q_x$ и $q_x = 2q_y$ (рис. 2.4). В других случаях влияние несекулярной части дипольного взаимодействия в рассматриваемой постановке исключает существование устойчивых огибающих, в том числе и солитонов.

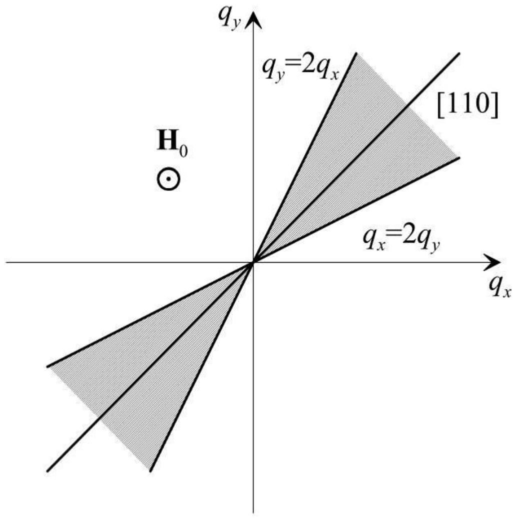


Рис. 2.4. Область устойчивости волн огибающей намагниченности при учёте несекулярной части дипольного взаимодействия (заштрихована). Показано также направление внешнего магнитного поля $\mathbf{H}_0$

Рассмотрим частный случай $q_x = q_y$ (движение волны вдоль оси *[110]*). При этом условии уравнения (2.42) преобразуются к симметричному виду:

$$
\begin{gathered}
(\psi'' - \psi) - \sigma\varphi + \beta(|\varphi|^2 + |\psi|^2)\psi = 0, \\
(\varphi'' - \varphi) - \sigma\psi + \beta(|\varphi|^2 + |\psi|^2)\varphi = 0, \\
\sigma = \frac{2s}{Sq^2}, \qquad \beta = \frac{2K^2}{M_S S q^2}.
\end{gathered}
\tag{2.45}
$$

Эта система допускает решение в виде солитонов, типичных для уравнений Шрёдингера с кубической нелинейностью:

$$
\varphi(\eta) = \psi(\eta) = u_S = \frac{\sqrt{\sigma+1}}{\sqrt{\beta}\cosh\left(\sqrt{\sigma+1}\eta\right)}. \tag{2.46}
$$

Положительная определённость подкоренного выражения накладывает ограничение на параметр σ, и, соответственно, на фазовую скорость *s*:

$$\sigma = \frac{2s}{Sq^2} > -1, \qquad s > -\frac{Sq^2}{2}. \tag{2.47}$$

Малое отклонение от оси *[110]* не вызывает неустойчивости полученных солитонных решений. Подстановка в (2.42) малых возмущений

$$\varphi = u_S + \alpha f, \qquad \psi = u_S + \alpha g, \tag{2.48}$$

где $\alpha = 6\overline{q}^2 / Sq^2$ – параметр, характеризующий величину отклонения от оси *[110]*, позволяет записать неоднородную линейную задачу для возмущений:

$$\begin{aligned} &f'' - f - \sigma g + 2\beta u_S^2 (g + 2f) = u_S - u_S'', \\ &g'' - g - \sigma f + 2\beta u_S^2 (2g + f) = -u_S + u_S''. \end{aligned} \tag{2.49}$$

Учитывая, что решение (2.46) локализовано вблизи $\eta = 0$ и экспоненциально затухает при удалении, можно перейти к асимптотическим линейным уравнениям, описывающим поведение намагниченности вдали от солитона:

$$\begin{aligned} &f'' - f - \sigma g = 0, \\ &g'' - g - \sigma f = 0, \end{aligned} \tag{2.50}$$

общее решение которых имеет вид:

$$\begin{aligned} f &= C_1 e^{\sqrt{\sigma+1}\eta} + C_2 e^{-\sqrt{\sigma+1}\eta} + C_3 \sin(\sqrt{\sigma-1}\eta) + C_4 \cos(\sqrt{\sigma-1}\eta), \\ g &= C_1 e^{\sqrt{\sigma+1}\eta} + C_2 e^{-\sqrt{\sigma+1}\eta} - C_3 \sin(\sqrt{\sigma-1}\eta) - C_4 \cos(\sqrt{\sigma-1}\eta). \end{aligned} \tag{2.51}$$

Возмущения остаются конечными при $C_1 = C_2 = 0$.

Таким образом, вдали от солитона при отклонении его от оси *[110]* будут формироваться бегущие гармонические волны, движущиеся в том же направлении и с той же скоростью. Из (2.51) следует также более жёсткое, чем ранее полученное (2.47) ограничение на существование устойчивых решений:

$$\sigma = \frac{2s}{Sq^2} > 1, \qquad |s| > \frac{Sq^2}{2}. \tag{2.52}$$

Оно ограничивает минимальную скорость распространения волн намагниченности при заданном значении волнового числа, и однозначно определяет, что фазовая и групповая скорость волн, формирующих солитон в дипольном парамагнетике, должны быть сонаправлены.

Частным случаем рассмотренной задачи является реализация парамагнитного дипольного солитона в одномерной спиновой цепочке. В этом случае уравнение для амплитуды волны намагниченности принимает вид уравнения Шрёдингера с кубической нелинейностью:

$$i\frac{\partial u}{\partial T_3}=\left(1-\frac{|u|^2}{2S^2}\right)\frac{\partial^2 u}{\partial l^2}-\frac{|u|^2 u}{2S^2}. \tag{2.53}$$

В пренебрежении квадратичной поправкой к диффузионному слагаемому, его решение соответствует описанному выше результату (2.46):

$$\begin{gathered} u=U(l-sT_3)\exp(i(ql-\nu T_3)), \\ U=\frac{2S\sqrt{\nu+q^2}}{\cosh\left(\sqrt{\nu+q^2}\,(l-sT_3)\right)}. \end{gathered} \tag{2.54}$$

Скорость волны равна

$$s=-2q, \tag{2.55}$$

или, в размерных единицах,

$$c=-2qa_0^2\omega_0 p_d(1-3\cos^2\theta)S. \tag{2.56}$$

Прямое численное моделирование уравнения (2.53) показывает, что поправка в диффузионном слагаемом не приводит к значительным искажениям структуры и скорости волн, поэтому анализ солитонов может быть реализован без её учёта (рис. 2.5) [163].

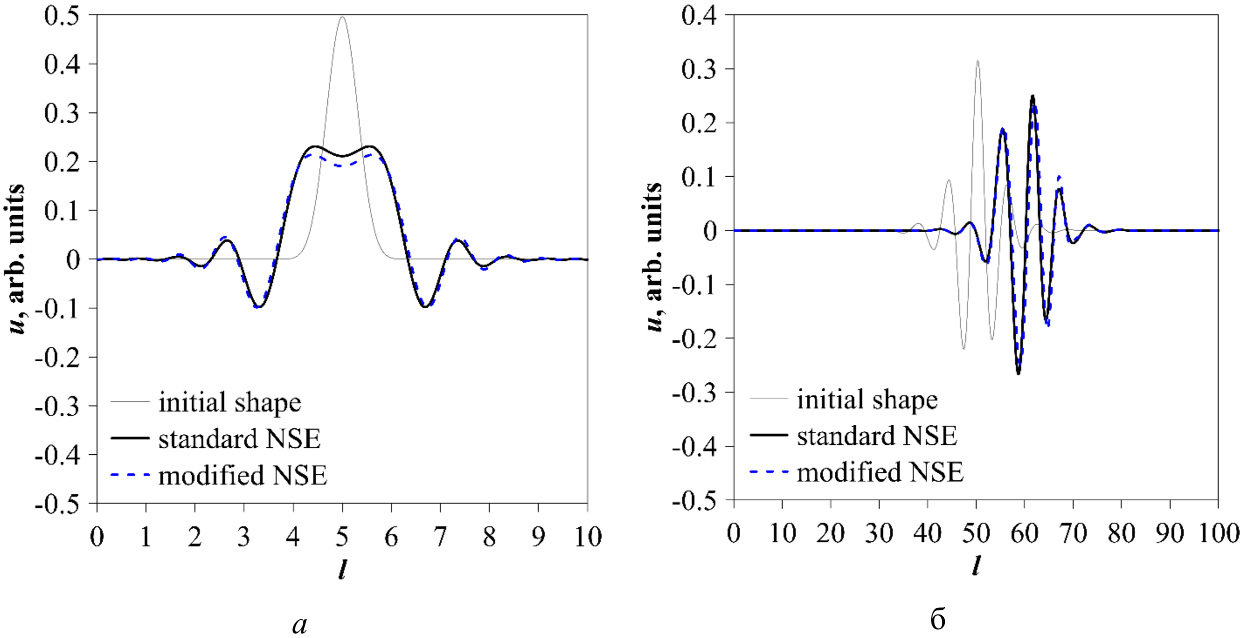


Рис. 2.5. Примеры эволюции: *а* – гауссова возмущения, *б* – солитона намагниченности в одномерной спиновой цепочке с учётом и без учёта нелинейной поправки к диффузионному слагаемому в нелинейном уравнении Шрёдингера

2.5. Заключение

В данной главе исследована динамика намагниченности низкотемпературного парамагнетика с простой кубической решёткой, помещённого в постоянное магнитное поле, ориентированное вдоль ребра элементарной ячейки, вблизи состояния насыщения. Применением вторичного квантования и преобразования Дайсона–Малеева к спиновому гамильтониану дипольной системы получены нелинейные уравнения, описывающие эволюцию намагниченности на узлах решётки.

Уравнения преобразованы к пределу сплошной среды, и выполнен анализ динамики намагниченности с применением метода многих масштабов, что позволило установить иерархию динамических явлений в парамагнитной среде. В разных порядках разложения последовательно воспроизводится ларморовская прецессия, дипольное уширение и образование сателлитов в спектре колебаний намагниченности, формирование нелинейных волн. Локализованные в пространстве возмущения возбуждают в среде бегущие волны большой длины. Наконец, в низкотемпературном парамагнетике с дипольным взаимодействием возможно существование солитонов огибающей, описывающихся уравнениями типа Шрёдингера с кубической нелинейностью. Такие солитоны распространяться перпендикулярно магнитному полю, модулируя более быструю продольную бегущую волну.

Анизотропия дипольного взаимодействия приводит к неустойчивости бегущих волн, распространяющихся в решётке вдоль внешнего магнитного поля. Несекулярные члены дипольного взаимодействия ограничивают область устойчивости солитонов – они существуют только в ограниченном интервале направлений вокруг кристаллографической оси *[110]*. При движении строго в системе реализуются чистые солитоны без дополнительных волн. Однако отклонение от оси *[110]* возбуждает также крупномасштабные колебания намагниченности благодаря вкладу несекулярной части, которые могут наблюдаться на большом расстоянии от солитона.

Глава 3. Волновая динамика и равновесная намагниченность двухкомпонентных низкотемпературных парамагнетиков

В настоящей главе рассматриваются свойства двухкомпонентного материала – ансамбля магнитных ионов, внедрённых в парамагнитную решётку, или осаждённых на поверхность парамагнитного материала. Получены уравнения, описывающие динамику намагниченности примеси и решётки в приближении сплошной среды.

В рамках сформулированной модели описан ряд возможных волновых процессов в двухкомпонентном низкотемпературном парамагнетике. Рассмотрен линейный волновой режим, получены дисперсионные соотношения и рассчитан отклик поперечной намагниченности на радиочастотный импульс. Построены два класса макроскопических решений – гармонические волны и солитоны намагниченности. Проанализированы границы областей их существования, оценены характерные длины и скорости волн. Изучено влияние дипольного и косвенного обменного взаимодействия в системе на динамику волновых процессов.

Изучены также свойства ансамбля примеси в модели магнитных димеров в постоянном магнитном поле, в приближении, что отдельные димеры имеют случайную энергию взаимодействия или случайный размер. Вычислена равновесная намагниченность и статическая восприимчивость системы. Собственные состояния димеров с нулевым полным спином приводят к уменьшению полной намагниченности при низкой температуре, если в системе преобладают ферромагнитные взаимодействия. Напротив, в ансамбле антиферромагнитных димеров реализуется ненулевая намагниченность благодаря тому, что большинство димеров переходит в состояние с единичным спином. Происходит размытие границ фазовых переходов, пропорциональное дисперсии случайного параметра в димерной системе.

3.1. Спиновый гамильтониан

Рассматривается двухкомпонентный низкотемпературный парамагнетик, состоящий из парамагнитной матрицы и распределённых в её объёме (или на поверхности, в случае двумерного материала) ионов примеси, также обладающих магнитными свойствами – ферромагнитных элементов [165, 166, 215–219], либо широко применяемых для функционализации углеродных структур водорода, азота или фтора [110, 251–254]. Сходной структурой обладают разбавленные магнитные полупроводники, например, Mn:GaAs, однако их динамика в значительной мере определяется беспорядком в расположении примеси [165–167].

При низкой концентрации примеси интенсивность взаимодействий в материале относительно мала, и поэтому материал остаётся парамагнитным вплоть до температур, близких к 0 К. Благодаря корреляциям электронов проводимости в основной матрице отдельные ионы примеси оказываются связаны РККИ-взаимодействием. Кроме того, следует учитывать дипольное взаимодействие внутри основной решётки, а также дипольное взаимодействие между ионами примеси и решётки (рис. 3.1).

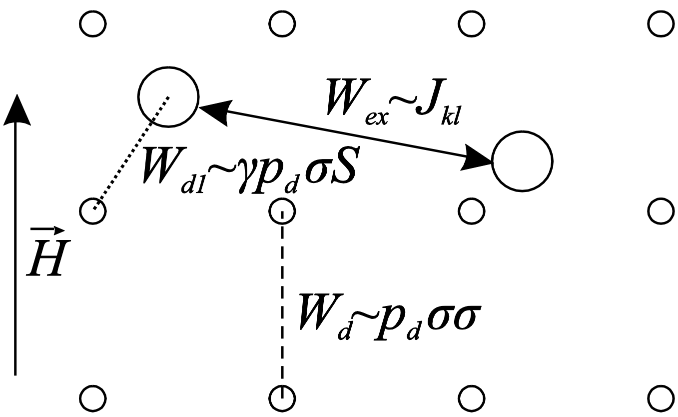


Рис. 3.1. Схематическая структура разбавленного магнитного композита в магнитном поле H; параметр W_{ex}~J_{kl} – это обменное взаимодействие ионов примеси (большие окружности); параметр W_d – дипольное взаимодействие между узлами основной решётки (малые окружности); учтено также дипольное взаимодействие примеси и отдельных узлов решётки W_{d1}

Полагая, что двухкомпонентная система находится во внешнем магнитном поле, гамильтониан, учитывающий вышеперечисленные взаимодействия, может быть записан следующим образом:

$$\begin{aligned}\frac{\hat{H}}{\hbar\omega_0} = &-\sum_j \sigma_j^z - \gamma\sum_k S_k^z + \sum_{kl} J_{kl}\mathbf{S}_k\cdot\mathbf{S}_l + \\ &+ p_d\sum_{jl}(1-3\cos^2\theta_{jl})\left(\sigma_j^z\sigma_l^z - \frac{1}{4}\left(\sigma_j^+\sigma_l^- + \sigma_j^-\sigma_l^+\right)\right) + \\ &+ 8\gamma Z n_S p_d \sum_{jk}(1-3\cos^2\theta_{jk})\sigma_j^z S_k^z,\end{aligned} \tag{3.1}$$

$$\gamma = \frac{\gamma_S}{\gamma_\sigma}, \qquad p_d = \frac{\hbar\gamma_\sigma^2}{\omega_0 a_0^3}, \qquad S^\pm = S^x \pm iS^y, \quad \sigma^\pm = \sigma^x \pm i\sigma^y,$$

где ω_0 – ларморовская частота магнитных моментов основной решётки; σ и S – операторы спина узлов решётки и ионов примеси, соответственно; γ_σ и γ_S – гиромагнитные отношения ионов решётки и примеси; введён также гиромагнитный параметр γ, равный их отношению; n_S – объёмная концентрация примеси; параметры p_p и J_{kl} – безразмерные интенсивности дипольного и косвенного обменного взаимодействия в системе, соответственно; θ_{jk} – угол между направлением внешнего магнитного поля (оно определяет направление оси z) и радиус-вектором, соединяющим ион матрицы j с ионом примеси k; a_0 – постоянная решётки; наконец, Z – число атомов в элементарной ячейке. Индексами ± обозначены циклические компоненты операторов спина. Несекулярными членами дипольных взаимодействий пренебрегается. Ввиду различия гиромагнитных отношений и собственных частот ионов решётки и примеси их дипольное взаимодействие описано только в рамках zz-приближения.

Множитель $8n_S$ перед членом, описывающим дипольное взаимодействие решётки с примесными атомами, обусловлен предположением, что в системе на одну элементарную ячейку приходится не более одного примесного атома. Соответственно, среднее расстояние между примесью и узлами решётки имеет величину порядка $a_0/2$, и, поскольку дипольное взаимодействие обратно пропорционально кубу расстояния, его энергия увеличивается в 8 раз по сравнению со взаимодействием между узлами регулярной решётки. Однако только n_S из всех ячеек содержит дополнительный атом и вносит вклад в энергию системы, и в среднем величина дипольного взаимодействия «примесь–решётка» уменьшается пропорционально концентрации примеси.

Внешнее магнитное поле приводит материал в состояние насыщения, которое рассматривается как основное состояние. Это позволяет ввести спиновые отклонения на узлах решётки, описываемые операторами рождения–уничтожения [28, 33, 156]. В данном случае используется два независимых семейства операторов для узлов решётки и ионов примеси:

$$\begin{gathered}
\sigma_j^z = \sigma - \alpha_j^\dagger \alpha_j,\ \sigma_j^+ \approx \sqrt{2\sigma}\alpha_j,\ \sigma_j^- \approx \sqrt{2\sigma}\alpha_j^\dagger,\\
S_k^z = \sigma - \beta_k^\dagger \beta_k,\ S_k^+ \approx \sqrt{2\sigma}\beta_k,\ S_k^- \approx \sqrt{2\sigma}\beta_k^\dagger,\\
\left[\alpha_j, \alpha_{j'}^\dagger\right] = \delta_{jj'},\quad \left[\beta_k, \beta_{k'}^\dagger\right] = \delta_{kk'},\\
\left[\alpha_j, \alpha_{j'}\right] = \left[\beta_k, \beta_{k'}\right] = \left[\alpha_j, \beta_{k'}^\dagger\right] = 0,
\end{gathered} \tag{3.2}$$

где α_j действует на узлах основной кристаллической решётки, а β_k – на примесных центрах. После подстановки (3.2) в (3.1) и нормализации произведений операторов значимая часть гамильтониана принимает следующий вид:

$$\begin{aligned}
\frac{\hat{H}}{\hbar\omega_0} = {} & \sum_j \alpha_j^\dagger \alpha_j + \gamma \sum_k \beta_k^\dagger \beta_k + S \sum_{kl} J_{kl} \left(\beta_k^\dagger \beta_j + \beta_k \beta_j^\dagger - 2\beta_k^\dagger \beta_k\right) - \\
& - \sigma p_d \sum_{kl} (1 - 3\cos^2\theta_{jl}) \left(\frac{1}{2}\left(\alpha_j \alpha_l^\dagger + \alpha_j^\dagger \alpha_l\right) + 2\alpha_j^\dagger \alpha_j \right) - \\
& - 8\gamma Z n_S p_d \sum_{jk} (1 - 3\cos^2\theta_{jk}) \left(2S\alpha_j^\dagger \alpha_j + 2\sigma \beta_k^\dagger \beta_k - \alpha_j^\dagger \beta_k^\dagger \alpha_j \beta_k\right).
\end{aligned} \tag{3.3}$$

Слагаемое $\alpha_j^\dagger \beta_k^\dagger \alpha_j \beta_k$ сохранено, поскольку в рамках сформулированной модели это единственный фактор, определяющий прямое взаимодействие подсистем решётки и примесных атомов.

3.2. Уравнения эволюции операторов спиновых отклонений. Осреднение в пределе сплошной среды

Временная эволюция спиновых отклонений α_j и β_k даётся соответствующими уравнениями Гейзенберга:

$$\frac{d\alpha_j}{dt} = i\left[\hat{H}, \alpha_j\right], \quad \frac{d\beta_k}{dt} = i\left[\hat{H}, \beta_k\right]. \tag{3.4}$$

Все входящие в них коммутаторы вычисляются непосредственно согласно (3.2) и дают следующие уравнения:

$$\begin{aligned}
i\frac{d\alpha_j}{dt} &= \alpha_j\left(1 - p_d f(N)\right) - \sigma p_d \sum_{kl}(1 - 3\cos^2\theta_\delta)\left(\frac{1}{2}\left(\alpha_\delta + \alpha_{-\delta}\right) + 2\alpha_j\right) - \\
&\quad - 8\gamma Z n_S p_d \sum_\lambda (1 - 3\cos^2\theta_\lambda)\left(2S\alpha_j - \alpha_j \beta_\lambda^\dagger \beta_\lambda\right), \\
i\frac{d\beta_k}{dt} &= \gamma\beta_k\left(1 - p_d f(N)\right) + S\sum_\mu J_\mu\left(\beta_\mu + \beta_{-\mu} - 2\beta_k\right) - \\
&\quad - 8\gamma Z n_S p_d \sum_\lambda (1 - 3\cos^2\theta_\lambda)\left(2\sigma\beta_k - \beta_k \alpha_\lambda^\dagger \alpha_\lambda\right),
\end{aligned} \tag{3.5}$$

где индексы δ, λ и μ обозначают радиус-векторы от выбранного узла j или k к соседям в ансамбле примесных ионов или узлах решётки, функция $f(N)$ описывает размагничивающее поле дальнодействующих сил.

Система (3.5) содержит N комплексных уравнений для узлов решётки и $n_S N$ – для примесных атомов. В общем случае, более того, уравнения не являются эквивалентными, поскольку значения углов θ и координаты примесных центров при случайном распределении примеси по матрице существенно варьируются. Это ограничивает возможности прямого анализа полученных уравнений. Задача может быть упрощена с применением приближения сплошной среды (2.14), которое преобразует решёточные уравнения в систему уравнений в частных производных [124, 327].

Полагая, что распределение примесных ионов в системе равномерное (или не имеет резко выраженных неоднородностей), можно произвести осреднение уравнений по углам θ_λ и векторам $\boldsymbol{\mu}$:

$$\left\langle \cos^2\theta_\lambda \right\rangle = \frac{1}{2},$$

$$S\sum_\mu J_\mu\left(\beta_\mu + \beta_{-\mu} - 2\beta_k\right) \approx S\sum_\mu J_\mu \frac{\partial^2\beta}{\partial x^p \partial x^q}\mu^p\mu^q \approx \tag{3.6}$$

$$\approx \left\langle SJ_\mu \frac{\partial^2\beta}{\partial x^p \partial x^q}\mu^p\mu^q \right\rangle \approx S\left\langle J_\mu \right\rangle a_0^2 n_S^{-2/3}\Delta\beta = j\Delta\beta.$$

Здесь параметр $a_0^2 n_S^{-2/3}$ – это среднее расстояние между примесными ионами $\langle \mu^2 \rangle$. При переходе к безразмерным единицам длины (в качестве масштаба удобно использовать постоянную решётки a_0), оператор Лапласа масштабируется как Δ/a_0^2. Соответственно, параметр интенсивности обменного взаимодействия j преобразуется к $S\left\langle J_\mu \right\rangle n_S^{-2/3}$.

Итак, после реализации процедуры перехода к сплошной среде и осреднения коэффициентов уравнения (3.5) в приближении взаимодействия только с ближайшими соседями дают систему для циклических компонент намагниченности решётки m и примеси M:

$$i\frac{\partial m}{\partial t} = (1 + 4Sa)m - Sp_d Dm + 4a\left|M\right|^2 m,$$

$$i\frac{\partial M}{\partial t} = (\gamma + 4\sigma a)M + j\Delta M + 4a\left|m\right|^2 M, \tag{3.7}$$

$$M = M_x + iM_y, \quad m = m_x + im_y, \quad a = Z\gamma p_d n_S,$$

где Δ – оператор Лапласа; анизотропия дипольного взаимодействия в основной решётке определяется дифференциальным оператором второго порядка D, конкретная структура которого зависит от геометрии решётки и ориентации внешнего магнитного поля относительно неё. В частности, простейшем для анализа частном случае простой кубической решётки, при направлении поля вдоль оси *[001]*, оператор D равен

$$D = \Delta - 3\frac{\partial^2}{\partial z^2}. \tag{3.8}$$

Как и модель (2.15)–(2.17), выведенные в настоящей главе уравнения описывают локальное состояние спиновой системы, состоящей теперь уже из двух подсистем – решётки и примеси. Из литературы известно, что уравнения данного класса имеют большое число разнообразных решений, в том числе и аналитических [28, 30–33, 334, 335].

Существенным упрощением является осреднение (3.6), однако оно может быть распространено в том числе на неоднородные распределения примеси, если характерный масштаб его неоднородностей будет много больше расстояния между ионами $a_0^2 n_S^{-2/3}$. В этом случае становится возможным описать j как функцию локальной концентрации примесных узлов, которая, в свою очередь, зависит от координат.

3.3. Линейные волны намагниченности в двухкомпонентной системе

3.3.1. Дисперсионные соотношения волн

Уравнения (3.7) могут быть проанализированы в квазилинейном приближении с использованием Фурье-разложений намагниченностей, которые фактически являются разложением по плоским спиновым волнам:

$$m = \frac{1}{2\pi N}\sum_{\omega,\mathbf{k}} \mathfrak{m}_{\omega,\mathbf{k}}\, \mathrm{e}^{-i\omega t - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \qquad M = \frac{1}{2\pi N}\sum_{\omega,\mathbf{k}} \mathfrak{M}_{\omega,\mathbf{k}}\, \mathrm{e}^{-i\omega t - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}. \tag{3.9}$$

где ω – собственная частота волны, $\mathbf{k}$ – соответствующий ей волновой вектор, а N – полное число узлов основной решётки. Векторы $\mathbf{k}$ образуют дискретный набор в обратном пространстве.

Прямая подстановка разложений (3.9) в (3.7) даёт однородную систему алгебраических уравнений, которая является нелинейной благодаря слагаемым $|M|^2 m$ и $|m|^2 M$:

$$\left(\omega - (1+4Sa) + p_d S\mathfrak{D}(\mathbf{k}) - \frac{4a}{(2\pi N)^2}\sum_{\Omega,\mathbf{q}}\left|\mathfrak{M}_{\Omega,\mathbf{q}}\right|^2\right)\mathfrak{m}_{\omega,\mathbf{k}} - \\ -2\sigma a\left(1-\frac{k^2}{16}\right)\mathfrak{M}_{\omega,\mathbf{k}} = 0, \tag{3.10}$$

$$-2Sa\left(1-\frac{k^2}{16}\right)\mathfrak{m}_{\omega,\mathbf{k}} + \left(\omega - (\gamma+4\sigma a) + jk^2 - \frac{4a}{(2\pi N)^2}\sum_{\Omega,\mathbf{q}}\left|\mathfrak{m}_{\Omega,\mathbf{q}}\right|^2\right)\mathfrak{M}_{\omega,\mathbf{k}} = 0,$$

где $\mathfrak{D}(\mathbf{k})$ – это Фурье-представление дифференциального оператора D. В частности, для простой кубической решётки выражение (3.8) преобразуется к следующему виду:

$$\mathrm{D} = \Delta - 3\frac{\partial^2}{\partial z^2}, \quad \mathfrak{D}(\mathbf{k}) = -k^2 + 3k_z^2, \quad \left\langle \mathfrak{D}(\mathbf{k}) \right\rangle = \frac{k^2}{2}, \tag{3.11}$$

среднее значение оператора вычислено через осреднение по углам между направлением вектора **k** и осью *z*. Замена оператора средним значением позволяет приближённо заменить его постоянным коэффициентом. Эта геометрия и будет рассматриваться далее.

Кроме $\mathfrak{D}(\mathbf{k})$ уравнения для волн намагниченности включают также нелинейные слагаемые. Для выявления наиболее общих характеристик системы можно приближённо записать суммы квадратов компонент поперечных намагниченностей в виде их средних значений, выразив их отклонением продольной намагниченности от насыщения:

$$\begin{gathered} \frac{1}{(2\pi N)^2}\sum_{\Omega,\mathbf{q}} \left|\mathfrak{m}_{\Omega,\mathbf{q}}\right|^2 \approx \left\langle \mathfrak{m}^2_{\Omega,\mathbf{q}} \right\rangle = \left\langle m^2 \right\rangle \approx \sigma - \left\langle m_z \right\rangle, \\ \frac{1}{(2\pi N)^2}\sum_{\Omega,\mathbf{q}} \left|\mathfrak{M}_{\Omega,\mathbf{q}}\right|^2 \approx \left\langle M^2 \right\rangle \approx S - \left\langle M_z \right\rangle. \end{gathered} \tag{3.12}$$

Эта подстановка линеаризует (3.10). Условие существования нетривиального решения для намагниченности – квадратное уравнение для частоты:

$$\begin{gathered} \left(\omega - (1+4Sa) + p_d S\mathfrak{D}(\mathbf{k}) - 4a(S - M_z)\right)\times \\ \times\left(\omega - (\gamma + 4\sigma a) + jk^2 - 4a(\sigma - m_z)\right) = 4a^2\sigma S\left(1 - \frac{k^2}{16}\right)^2. \end{gathered} \tag{3.13}$$

Его решение даёт дисперсионное соотношение, которое в общем случае имеет следующий вид:

$$\omega_{\mathbf{k}}^{\pm} = \frac{1+\gamma}{2} + 2a\left(\langle m_z\rangle + \langle M_z\rangle\right) + \frac{jk^2}{2} + \frac{p_d S}{2}\mathfrak{D}(\mathbf{k}) \pm$$

$$\pm\left\{\frac{(1-\gamma)^2}{4} + \left[4p_d S + (1-\gamma)\left(\langle m_z\rangle + \langle M_z\rangle\right)\right]a + 4a^2\left(\langle m_z\rangle - \langle M_z\rangle\right)^2 + \right.$$

$$+\left[2aj\left(\langle m_z\rangle + \langle M_z\rangle\right) + \frac{3+\gamma}{2}j - \frac{\sigma S a^2}{2} - \frac{jp_d S}{2}\mathfrak{D}(\mathbf{k})\right]k^2 + \tag{3.14}$$

$$+\left[\left[\frac{1+3\gamma}{2} + 2a\left(\langle m_z\rangle + \langle M_z\rangle + 2\sigma\right)\right]p_d S + \left(\frac{p_d S}{2}\right)^2\mathfrak{D}(\mathbf{k})\right]\mathfrak{D}(\mathbf{k}) +$$

$$\left. + \frac{1}{4}\left(j^2 + \frac{3Sa^2}{8}\right)k^4\right\}.$$

Видно, что дисперсионное соотношение включает две независимые ветви спектра. Параметры взаимодействия p_d и j имеют типичную величину порядка 10^{-2} и менее в реальных магнитных композитах [3]. Поэтому практически применимо разложение в ряды по p_d и j С учётом осреднения дипольного оператора (3.11) это даёт:

$$\begin{aligned}
\omega_{\mathbf{k}}^{+} &= \gamma + \frac{j}{2}\left(1 + \frac{\gamma+3}{\gamma-1}\right)k^2 + \\
&\quad + p_d\left(\gamma Z n_S\left(\langle m_z\rangle + \langle M_z\rangle\right) + \left(1 + \frac{3\gamma+1}{\gamma-1}\right)Sk^2\right) + \mathrm{O}(j^2 + p_d^2), \\
\omega_{\mathbf{k}}^{-} &= 1 + \frac{j}{2}\left(1 - \frac{\gamma+3}{\gamma-1}\right)k^2 + \\
&\quad + p_d\left(3\gamma Z n_S\left(\langle m_z\rangle + \langle M_z\rangle\right) + \left(1 - \frac{3\gamma+1}{\gamma-1}\right)Sk^2\right) + \mathrm{O}(j^2 + p_d^2).
\end{aligned} \tag{3.15}$$

Первое выражение определяет собственные частоты примесных ионов, поскольку эта ветвь локализована вокруг значения γ. Соответственно, вторая ветвь спектра описывает прецессию ионов решётки.

Обобщённая структура полученный дисперсионных соотношений даётся параболической функцией

$$\omega_{\mathbf{k}}^{\pm} = \alpha^{\pm} \pm \beta k^2, \tag{3.16}$$

Качественно она подобна длинноволновой асимптотике дисперсионных соотношений обменных спиновых волн в разнообразных системах [30, 33, 216]. Постоянное слагаемое определяет ларморовскую частоту и её сдвиг благодаря взаимодействиям. Рассчитанный пример спектра (3.15) для конкретных параметров взаимодействия показан на рис. 3.2. Между двумя ветвями спиновых волн существует запрещённая зона шириной

$$\Delta\omega = (\gamma - 1) - 2 p_d \gamma Z n_S \left(\langle m_z \rangle + \langle M_z \rangle \right). \tag{3.17}$$

При значении $\gamma = 1$ она исчезает.

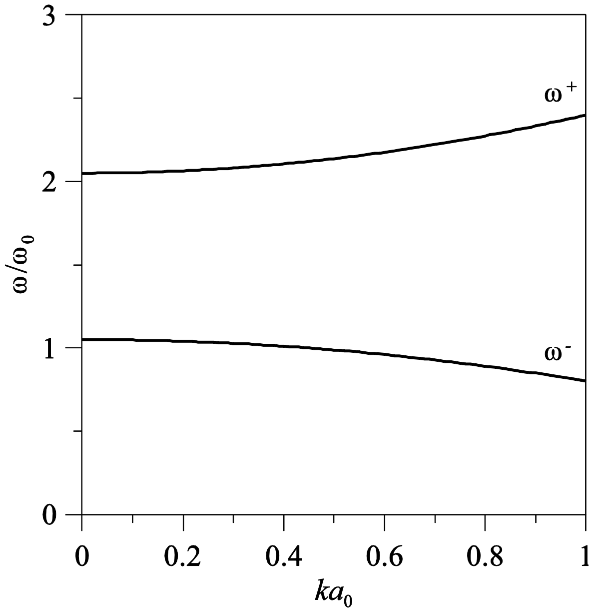


Рис. 3.2. Дисперсионные соотношения линейных спиновых волн в разбавленном магнитном композите в пределе сплошной среды; параметры взаимодействия j, $p_d = 10^{-2}$, гиромагнитный параметр $\gamma = 2$

3.3.2. Отклик поперечной намагниченности

Представление (3.16) позволяет получить аналитические выражения для отклика поперечной намагниченности двухкомпонентного материала под действием различных возмущающих полей. Теория линейного отклика приводит к выражению поперечной намагниченности через восприимчивости и Фурье-образ возмущения [31, 336]. Поскольку дисперсионные соотношения $\omega_{\mathbf{k}}$ для обеих ветвей спектра получились чисто вещественными, описываемая модель не описывает релаксационные процессы.

Рассмотрим отклик на прямоугольный радиочастотный импульс длительностью 2τ с частотой несущей Ω (5.71). Дисперсионное соотношение (3.16) изотропно, и поэтому возможен переход к интегралу в сферических координатах:

$$M_x(t) = \mathrm{Re}\left\{ \frac{iH_0}{(2\pi)^2} \int_0^\infty dk k^2 \frac{\sin(\alpha + \beta k^2 - \Omega)\tau}{\alpha + \beta k^2 - \Omega} 2i \sin(\alpha + \beta k^2)t \right\}. \qquad (3.18)$$

Представляя синусы в виде комплексных экспонент, можно разбить интеграл на четыре слагаемых одинаковой структуры:

$$\begin{aligned} M_x(t) \propto \frac{H_0}{2(2\pi)^2} \Bigg[& \exp\big(i\alpha(t+\tau) - i\Omega\tau\big) \int_0^\infty dk \frac{k^2 \exp\big(i\beta(t+\tau)k^2\big)}{\beta k^2 + (\alpha - \Omega)} - \\ & - \exp\big(i\alpha(t-\tau) + i\Omega\tau\big) \int_0^\infty dk \frac{k^2 \exp\big(i\beta(t-\tau)k^2\big)}{\beta k^2 + (\alpha - \Omega)} + \\ & + \exp\big(-i\alpha(t+\tau) + i\Omega\tau\big) \int_0^\infty dk \frac{k^2 \exp\big(-i\beta(t+\tau)k^2\big)}{\beta k^2 + (\alpha - \Omega)} - \\ & - \exp\big(-i\alpha(t-\tau) - i\Omega\tau\big) \int_0^\infty dk \frac{k^2 \exp\big(-i\beta(t-\tau)k^2\big)}{\beta k^2 + (\alpha - \Omega)} \Bigg]. \end{aligned} \qquad (3.19)$$

Возникшие интегралы вычислены по формуле 3.466.2 из [337]:

$$\begin{gathered} \int_0^\infty dx \frac{x^2 \exp\big(-\mu^2 x^2\big)}{x^2 + \xi^2} = \frac{\pi^{1/2}}{2\mu} - \frac{\pi\xi}{2} \exp\big(\mu^2 \xi^2\big)\big(1 - \mathrm{erf}\, \mu\xi\big), \\ x = \beta k^2, \quad \mu = (\mp i(t \pm \tau))^{1/2}, \quad \xi = (\alpha - \Omega)^{1/2}. \end{gathered} \qquad (3.20)$$

Таким образом, прямая подстановка табличного результата позволяет записать явное выражение для отклика поперечной компоненты намагниченности:

$$M_x(t) \propto \frac{\pi H_0}{4(2\pi)^2 \beta^{3/2}} \times$$

$$\times\left[\left(\frac{1}{(-i\pi(t+\tau))^{1/2}} - \lambda^{1/2} \exp\left(-i\lambda(t+\tau)\right)\left(1 - \operatorname{erf}\left(-i\lambda(t+\tau)\right)^{1/2}\right)\right) -\right.$$
$$-\left(\frac{1}{(-i\pi(t-\tau))^{1/2}} - \lambda^{1/2} \exp\left(-i\lambda(t-\tau)\right)\left(1 - \operatorname{erf}\left(-i\lambda(t-\tau)\right)^{1/2}\right)\right) + \tag{3.21}$$
$$+\left(\frac{1}{(i\pi(t+\tau))^{1/2}} - \lambda^{1/2} \exp\left(i\lambda(t+\tau)\right)\left(1 - \operatorname{erf}\left(i\lambda(t+\tau)\right)^{1/2}\right)\right) -$$
$$\left.-\left(\frac{1}{(i\pi(t-\tau))^{1/2}} - \lambda^{1/2} \exp\left(i\lambda(t-\tau)\right)\left(1 - \operatorname{erf}\left(i\lambda(t-\tau)\right)^{1/2}\right)\right)\right],$$

где $\lambda = \alpha - \Omega$.

Дополнительное упрощение результата получается при больших временах t с помощью асимптотического разложения функции ошибок:

$$1 - \operatorname{erf} x = \frac{\exp\left(-x^2\right)}{\pi^{1/2}}\left(\frac{1}{x} - \frac{1}{2x^3} + \ldots\right). \tag{3.22}$$

Например, для первого слагаемого:

$$\frac{\pi^{1/2}}{2(-i(t+\tau))^{1/2}} - \frac{\pi\lambda^{1/2}}{2} \exp\left(-i\lambda(t+\tau)\right)\left(1 - \operatorname{erf}\left(-i\lambda(t+\tau)\right)^{1/2}\right) =$$
$$= \frac{\pi^{1/2}}{2(-i(t+\tau))^{1/2}} - \frac{\pi^{1/2}\lambda^{1/2}}{2}\left(\frac{1}{\left(-i\lambda(t+\tau)\right)^{1/2}} - \frac{1}{2\left(-i\lambda(t+\tau)\right)^{3/2}} + \ldots\right) \approx \tag{3.23}$$
$$\approx \frac{\pi^{1/2}}{4\lambda\left(-i(t+\tau)\right)^{3/2}}.$$

Слагаемые, пропорциональные $t^{-1/2}$, исключаются во всех членах (3.21).

Соответственно, длинноволновая асимптотика поперечной намагниченности, отвечающая одной из ветвей спектра (3.15), в трёхмерном случае может быть представлена как:

$$M_x(t) \propto \left(\frac{\cos(\alpha(t+\tau) - \Omega\tau)}{(t+\tau)^{3/2}} - \frac{\cos(\alpha(t-\tau) + \Omega\tau)}{(t-\tau)^{3/2}}\right) + \mathrm{O}\left(t^{-5/2}\right). \tag{3.24}$$

Параметр α зависит только от p_d (см. (3.15)). Поэтому сдвиг резонансной частоты определяется только дипольным взаимодействием в системе.

Обменное взаимодействие полностью коммутирует с секулярной частью дипольного и зеемановскими членами гамильтониана и не приводит к изменению собственных частот системы. В то же время j вместе с p_d входит в параметр β, и поэтому характерное время спада свободной индукции и амплитуду отклика намагниченности определяется обоими механизмами. Полная намагниченность системы даётся суперпозицией (3.24), рассчитанных отдельно для $\omega_{\mathbf{k}}^{+}$ и $\omega_{\mathbf{k}}^{-}$.

На рис. 3.3 показан спад затухания намагниченности и его Фурье-спектр, соответствующий значениям параметров $\gamma \sim 2$, $p_d \sim 0.05$ и $j \sim 0.05$. Сравнительно большие значения интенсивностей взаимодействия выбраны для получения видимых эффектов на графиках. Спектр при таких параметрах, очевидно, включает две основных частоты вблизи $\omega = 1$ и $\omega = 2$, отвечающих сигналам от основной решётки и примесной подсистемы. Видимый на графиках сдвиг пиков обусловлен влиянием дипольных взаимодействий.

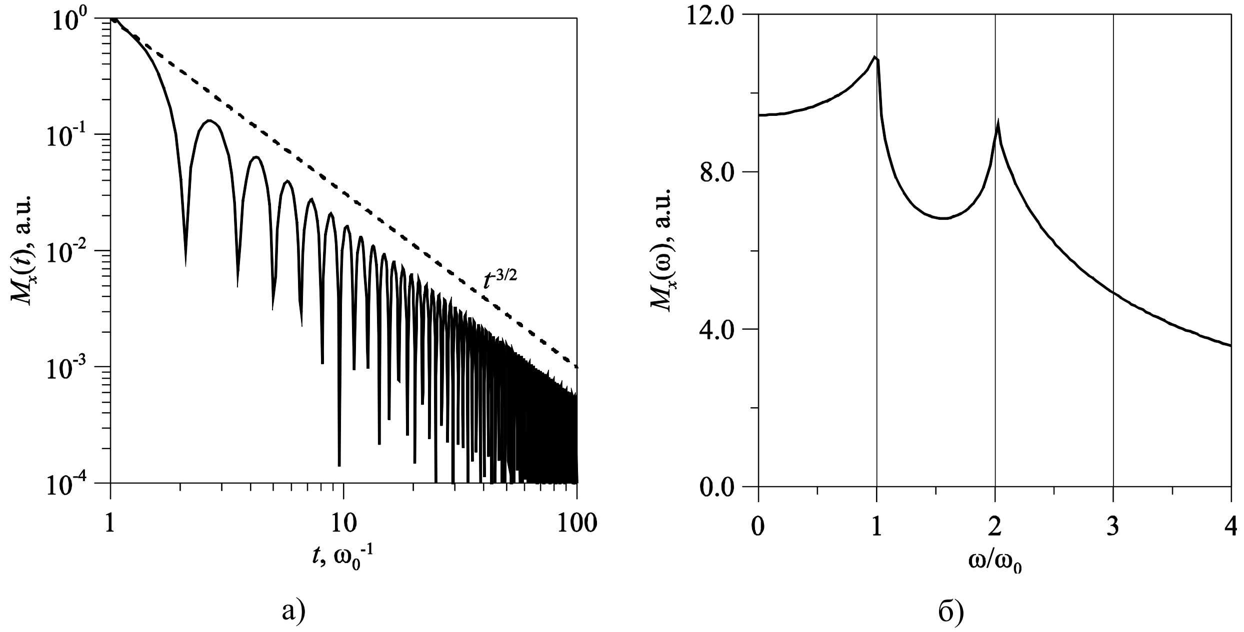


Рис. 3.3. Отклик поперечной намагниченности разбавленного композита на радиочастотный импульс в приближении сплошной среды: а) – спад свободной индукции; б) – Фурье-спектр сигнала. Параметры системы приведены в тексте

3.4. Нелинейные волны в двухкомпонентной системе

3.4.1. Бегущие плоские волны

Перейдём теперь к описанию макроскопических волн в двухкомпонентном низкотемпературном парамагнетике. Простейшими вариантами решения задачи (3.7) являются бегущие волны постоянной амплитуды. В пренебрежении дипольным взаимодействием между ионами основной решётки, они будут прецессировать вокруг направления внешнего магнитного поля с частотой (1+4Sa) (см. уравнение для m в (3.7)):

$$\begin{gathered} m = m_0 \exp\left\{-i(1+4Sa)t\right\} = m_0 \exp\left\{-i\omega t\right\}, \\ m_0^2 = \left(\gamma_\sigma \sigma\right)^2 - (m^z)^2. \end{gathered} \tag{3.25}$$

Амплитуда прецессии поперечной намагниченности m_0 в равновесном состоянии определяется функцией Бриллюэна для спина величиной σ. Такое поведение магнитных моментов решётки приводит к появлению неоднородности в уравнении для намагниченности примеси M, которое при этом преобразуется в линейное:

$$i\frac{\partial M}{\partial t} = \left(\gamma + 4\sigma a + 4a\left|m_0\right|^2\right)M + j\Delta M. \tag{3.26}$$

Уравнение допускает решение вида

$$M = V(\vec{n}\cdot\vec{r} - ct)\exp\left\{i(\vec{q}\cdot\vec{r} - \omega t)\right\}, \quad \vec{n} = \frac{\vec{q}}{q}, \tag{3.27}$$

где q – волновой вектор, а c – скорость огибающей. V является решением линейного ОДУ с постоянными коэффициентами:

$$\begin{aligned} &jV'' + i\left(c + 2jq\right)V' + \\ &\quad + \left(\left(\gamma - 1\right) + 4a(\sigma - S) + 4a\left|m_0\right|^2 - jq^2\right)V = 0. \end{aligned} \tag{3.28}$$

Вещественность огибающей V позволяет найти скорость волны c:

$$c = -2jq. \tag{3.29}$$

Огибающая имеет следующий вид:

$$V = A\cos\left(k(\vec{n}\cdot\vec{r} - ct) + \varphi\right),$$
$$k^2 = \frac{(\gamma - 1) + 4a(\sigma - S) + 4a|m_0|^2}{j} - q^2. \tag{3.30}$$

Амплитуда A и фаза φ определяется начальными условиями. Возможные значения волнового числа q ограничиваются условием $k^2 > 0$. Более короткие волны неустойчивы. Пример смоделированной волны (3.30) представлен на рис. 3.4. Описанное решение можно трактовать как биения между однородной прецессией ионов решётки и прецессией примесной подсистемы, связанной дипольными и обменными взаимодействиями.

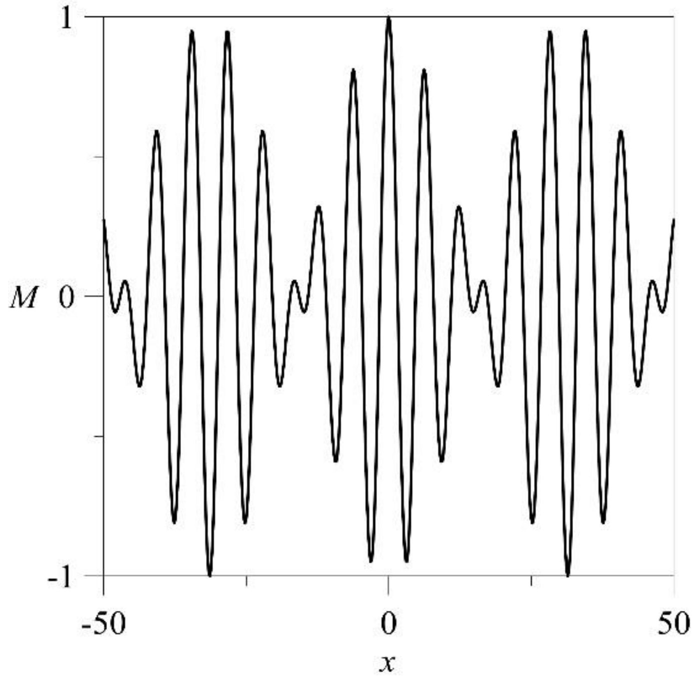


Рис. 3.4. Схематическое изображение бегущей волны намагниченности примеси (3.30): случай однородной прецессии кристаллический решётки

Когда спины ионов, составляющих подсистемы, равны, а гиромагнитный параметр γ близок к 1, критическое значение q равно

$$q^2 < \frac{4\gamma p_d |m_0|^2}{S a_0^2 \langle J_\mu \rangle} n_S^{5/3}. \tag{3.31}$$

Таким образом, величина критического волнового числа пропорциональна отношению дипольного и обменного взаимодействий в подсистемах.

Для оценки можно положить, что $\gamma \sim 1$, $S \sim 1/2$, $p_d / \langle J_\mu \rangle \sim 0.1$,

$a_0 \sim 0.5$ нм и $n_S \sim 10\%$. Эти параметры приблизительно соответствуют свойствам известных двухкомпонентных низкотемпературных парамагнетиков [3]. Минимальная длина волны при перечисленных параметрах и $|m_0|^2 \sim 0.4$ составляет величину порядка 100 нм. Из выражения для критического волнового числа следует также, что описанные бегущие волны устойчивы только при условии, что взаимодействие является ферромагнитным, тогда как антиферромагнитные свойства материала приводят к дестабилизации волн.

3.4.2. Солитоны

Другим типом возможных решений являются солитоны. Они могут быть получены из (3.7) с применением подстановки [327]:

$$\begin{aligned} m &= U(\vec{l}\cdot\vec{r} - ct)\exp\left\{i(\vec{k}\cdot\vec{r} - \omega t)\right\}, \quad \vec{l} = \frac{\vec{k}}{k}, \\ M &= V(\vec{n}\cdot\vec{r} - ct)\exp\left\{i(\vec{q}\cdot\vec{r} - \Omega t)\right\}, \quad \vec{n} = \frac{\vec{q}}{q}. \end{aligned} \tag{3.32}$$

где ω и Ω – частоты свободной прецессии компонент системы, а U, V – вещественные функции. В общем случае частоты различны, и в уравнениях после подстановки возникают осциллирующие коэффициенты, которые исключаются, если равны фазы несущих:

$$(\vec{q} - \vec{k})\cdot\vec{r} = (\Omega - \omega)t\,. \tag{3.33}$$

В этом случае применим стандартный подход к построению солитонных решений с разделением уравнений на вещественную и мнимую части.

Мнимая часть системы имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} &(c - 2kp_d(1 - 3\cos\theta))U' + \frac{\sigma q}{8}V' = 0, \\ &\frac{Sk}{8}U' + (c + 2jq)V' = 0, \end{aligned} \tag{3.34}$$

где θ – это угол между направлением внешнего поля и волны намагниченности решётки m. Производные U' и V' ненулевые, иначе они приводят к тривиальному решению. Систему (3.34) можно рассматривать как линейную алгебраическую относительно производных. Соответственно, её определитель позволяет вычислить скорость огибающих:

$$c = \left(kp_d(1-3\cos\theta) - jq\right) \pm \left(\left(kp_d(1-3\cos\theta) + jq\right)^2 + \frac{S\sigma}{64}kq\right)^{1/2}. \quad (3.35)$$

Видно, что существует две независимые ветви решений. В пределе длинных волн (q, $k \to 0$) скорости пропорциональны волновому числу:

$$\begin{aligned} c_+ &= 2kp_d(1-3\cos\theta) + O(kq), \\ c_- &= -2jq + O(kq). \end{aligned} \quad (3.36)$$

Скорость c_+ определяется дипольной энергией, а c_- – обменный взаимодействием в системе. Подстановка характерных значений параметров низкотемпературных парамагнетиков (см. выше) показывает, что скорость солитона в поле ~100 Гс составляет 10^{-3}÷10^{-1} нм/с.

Вещественная часть уравнений для намагниченности определяет систему обыкновенных дифференциальных уравнений для огибающих:

$$\begin{aligned} j(V'' - q^2V) + SU + \varepsilon U^2V &= 0, \\ p(U'' - k^2U) + \sigma V + \varepsilon V^2U &= 0, \end{aligned} \quad (3.37)$$

где $p = p_d\left(1-3\cos^2\theta\right)$, $\varepsilon = 4a$. Их решение (рис. 3.5):

$$V = \frac{A}{\cosh\lambda(\vec{n}\cdot\vec{r} - ct)}, \quad U = \frac{B}{\cosh\lambda(\vec{n}\cdot\vec{r} - ct)}. \quad (3.38)$$

Поскольку в рассматриваемой задаче $\varepsilon>0$, устойчивы только яркие солитоны намагниченности. При $p < 0$ решение становится неустойчивым и распадается на суперпозицию спиновых волн. Дипольное взаимодействие, таким образом, ограничивает возможные направления распространения локализованных волн намагниченности в двухкомпонентном материале – должно выполняться условие $\cos\theta < 1/\sqrt{3}$ (угол $\theta < 57.3°$). Аналогично, неустойчивость возникает, если в примесной подсистеме преобладает антиферромагнитное взаимодействие, и параметр $j < 0$.

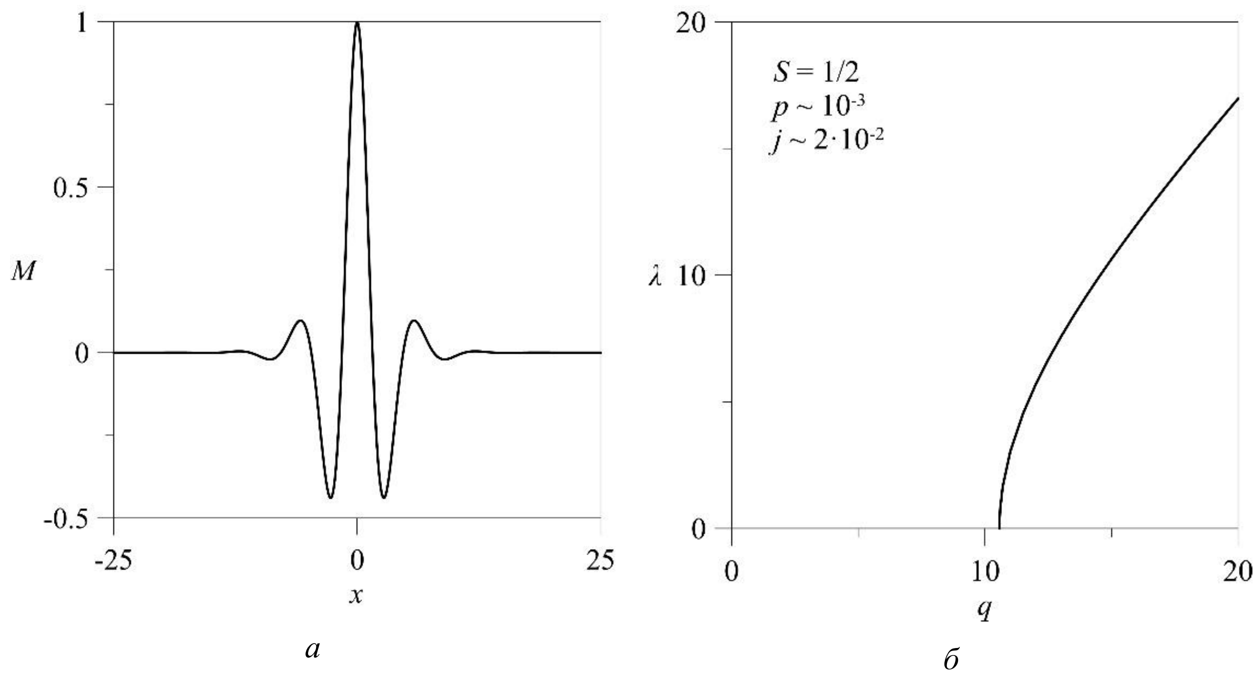


Рис. 3.5. Солитон намагниченности в примесной подсистеме: а – структура огибающей, параметр ширины $\lambda \sim 1/2$; б – зависимость параметра ширины солитона λ от волнового числа несущей

Прямая подстановка (3.38) в (3.37) позволяет явно выразить амплитуды через интенсивности взаимодействий в системе и параметр ширины солитона λ через волновые числа решений:

$$A = \lambda \left(\frac{2p}{\varepsilon} \right)^{1/2}, \quad B = \lambda \left(\frac{2j}{\varepsilon} \right)^{1/2},$$
$$\lambda^2 = q^2 - \frac{S}{(pj)^{1/2}}, \quad k^2 = q^2 + \frac{\sigma - S}{(pj)^{1/2}}. \tag{3.39}$$

Здесь волновое число q играет роль свободного параметра. λ должна быть вещественной величиной, и поэтому (3.39) задаёт критическое значение q, ограничивающее область существования устойчивого решения. В противоположность решению в виде бегущих волн намагниченности, здесь оказываются устойчивыми только достаточно короткие волны (рис. 3.5, *б*). Например, при значениях параметров $S \sim 1/2$, $p \sim 10^{-3}$, $\left\langle J_\mu \right\rangle \sim 10^{-2}$ и $n_S \sim 10$ % [3], $j \sim 2 \cdot 10^{-2}$, и минимальное значение волнового числа $q \sim 10 a_0^{-1}$.

Возможность генерации режимов с обострением или гигантских волн, принципиально допустимых моделью, не рассматривается, поскольку в описанных системах их реализация ограничивается постоянством модуля магнитного момента ионов, а также их фиксированным расположением в решётке.

3.5. Магнетизм ансамбля димеров

3.5.1. Собственные состояния

Далее рассмотрены особенности примесного ансамбля в составе двухкомпонентной системы – атомов ферро- или парамагнитного элемента, осаждённых на поверхности проводящего основания. Предполагается, что расстояние между отдельными магнитными ионами является случайной величиной, при этом весь ансамбль может быть разделён на тесные независимые димеры (рис. 3.6). Для упрощения расчётов принято, что положения магнитных ионов не подвержены влиянию тепловых флуктуаций, поскольку типичная энергия связи их с подложкой составляет величину порядка 1 эВ [338].

Взаимодействие магнитных ионов на проводящей подложке описывается РККИ-механизмом:

$$J(r) = C\frac{k_F r\cos k_F r - \sin k_F r}{(k_F r)^4}, \tag{3.40}$$

где C – характеристика интенсивности и знака взаимодействия ближайших соседних ионов, r – расстояние между ними (в рассматриваемой задаче это размер димера), и k_F – импульс Ферми. Максимальный размер димера ограничивается концентрацией примеси, тогда как минимальный по порядку величины сопоставим с постоянной решётки.

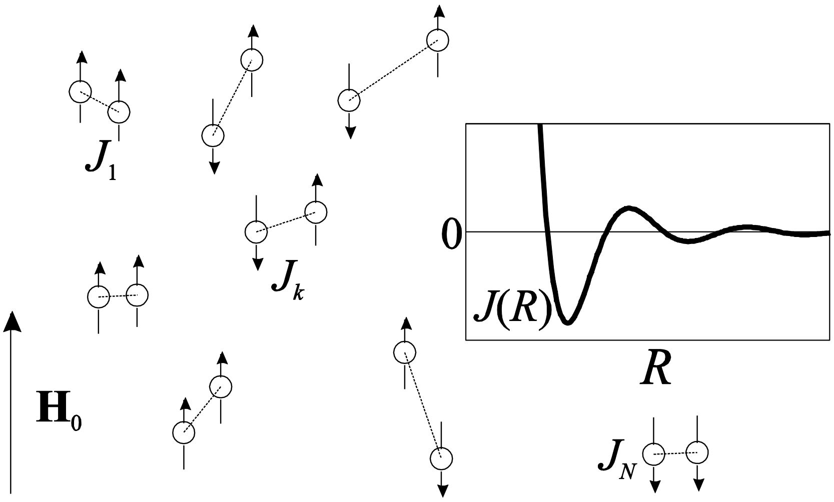


Рис. 3.6. Схематическое изображение системы *N* димеров под воздействием внешнего магнитного поля. На врезке показана качественная зависимость РККИ-взаимодействия от размера димера (межчастичного расстояния)

Базовым элементом структуры описываемой системы является магнитный димер – пара взаимодействующих посредством РККИ-механизма атомов, каждый из которых имеет спин $s = 1/2$. Гамильтониан димера в постоянном магнитном поле $\mathbf{H}_0$ имеет следующий вид:

$$\frac{H}{\hbar\omega_0} = -\left(S_1^z + S_2^z\right) + J\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2, \tag{3.41}$$

где ω_0 – ларморовская частота атомов, J – обменный интеграл, нормализованный на энергию Зеемана. Спиновые операторы определяются следующим образом:

$$\mathbf{S}_1 = \frac{1}{2}\boldsymbol{\sigma} \otimes \mathbf{I}, \quad \mathbf{S}_2 = \frac{1}{2}\mathbf{I} \otimes \boldsymbol{\sigma}, \tag{3.42}$$

где $\mathbf{I}$ – единичная матрица 2×2, $\boldsymbol{\sigma}$ – операторы Паули, а символ $\otimes$ обозначает тензорное произведение Кронекера. Задача (3.41) имеет простое точное решение. Энергетические уровни димера равны

$$E_0 = \frac{3J}{4}, \; E_{1,3} = \mp 1 - \frac{J}{4}, \; E_2 = -\frac{J}{4}, \tag{3.43}$$

и им соответствуют следующие собственные векторы:

$$|\psi_0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}, \; |\psi_1\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \; |\psi_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \; |\psi_3\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \qquad (3.44)$$

Состояние $|\psi_0\rangle$ имеет нулевой полный спин, тогда как три остальных отвечают полному спину 1 и образуют триплет. Именно, $|\psi_{1,3}\rangle$ отвечают ненулевой проекции спина на направление поля $S^z = \pm 1$, тогда как $|\psi_2\rangle$ определяет состояние димера при $S^z = 0$.

3.5.2. Нормальное распределение обменной энергии

Полученная выше точная информация об уровнях энергии и собственных векторах позволяет вычислить статистическую сумму для ансамбля невзаимодействующих димеров, если дополнительно задать функцию распределения энергии взаимодействия. Достаточно общей аппроксимацией служит Гауссова модель со средним значением обменной энергии J_0 и дисперсией Δ [195]:

$$\rho_J = \frac{1}{\sqrt{2\pi\Delta^2}} \exp\left(-\frac{(J - J_0)^2}{2\Delta^2} \right). \qquad (3.45)$$

Она учитывает возможность вариации как величины, так и знака РККИ-взаимодействия (3.40). Фактически, обменный параметр может учитываться как дополнительная степень свободы системы.

При фиксированной обменной энергии J статистическая сумма системы димеров имеет следующих вид:

$$Z_J = \sum_{n=0}^{3} \exp(-\beta E_n(J)), \qquad (3.46)$$

где $\beta = \hbar\omega_0 / T$ – отношение зеемановской и тепловой энергии. Она точно вычисляется:

$$Z_J = \exp\left(\frac{\beta J}{4} \right)(1 + 2\cosh\beta) + \exp\left(-\frac{3\beta J}{4} \right). \qquad (3.47)$$

Первое слагаемое здесь описывает триплетное состояние, а второе определяется единственным состоянием с нулевым полным спином.

Продольная намагниченность системы димеров с фиксированным обменом определяется стандартным образом:

$$M_J^z = \frac{1}{Z_J}\sum_{n=0}^{3}\exp(-\beta E_n(J))\langle\psi_n | S_1^z + S_2^z | \psi_n\rangle. \tag{3.48}$$

В (3.48) ненулевой вклад вносят только $|\psi_1\rangle$ и $|\psi_3\rangle$, отвечающие проекциям спина на направление поля ± 1. Соответственно, намагниченность равна

$$M_J^z = \frac{1}{Z_J}\exp\left(\frac{\beta J}{4}\right)\sinh\beta. \tag{3.49}$$

Интегрирование по всем возможным значениям J с учётом функции распределения позволяет вычислить полную намагниченность системы случайных димеров:

$$M^z = \int_{-\infty}^{+\infty}\rho_J M_J^z dJ. \tag{3.50}$$

К сожалению, приведённый интеграл в случае гауссова распределения не вычисляется аналитически, однако при малых значениях дисперсии обменной энергии σ доступна его оценка по методу Лапласа [339].

Этот метод применяется для оценки интегралов вида

$$I = \int_a^b f(x)\exp(\lambda S(x))dx, \tag{3.51}$$

где λ – большой параметр, а функция $S(x)$ имеет локальный максимум внутри интервала интегрирования в точке x_0. Разложение подынтегрального выражения в ряд Тейлора вблизи неё даёт оценку интеграла:

$$I \approx \sqrt{\frac{-2\pi}{\lambda S''(x_0)}}\exp(\lambda S(x_0))\left(f(x_0) + O(\lambda^{-1})\right). \tag{3.52}$$

В рассматриваемом случае параметр $\lambda = 1/\Delta^2$, а функция $S(x)$ равна $(2\beta J_0\Delta^2 - (J - J_0)^2)/2$ для гауссова распределения. Подставляя их в (3.52), получаем для намагниченности следующее выражение:

$$M^z \approx \frac{2\sinh\beta \exp\left(\beta J_0 + \dfrac{\beta^2\Delta^2}{2}\right)}{1+(1+2\cosh\beta)\exp(\beta J_0 + \beta^2\Delta^2)}. \tag{3.53}$$

Равновесная магнитная восприимчивость (её произведение с температурой) также определяется найденной намагниченностью:

$$\chi T = \frac{M^z}{\beta}. \tag{3.54}$$

Показанная оценка позволяет описать асимптотики намагниченности и восприимчивости при малых и больших значениях β. Для построения показанных ниже графиков использовано прямое численное интегрирование выражения (3.50) методом трапеций. Сходимость процедуры интегрирования обусловлена быстрым спадом функции распределения на бесконечности. При численном построении функций намагниченности и восприимчивости вычисление производилось в пределах $J_0 \pm 10$ с шагом 0.1. Это обеспечило точность не хуже 10^{-6} по сравнению с интервалом $J_0 \pm 5$.

На рис. 3.7 и 3.8 показаны результаты вычисления намагниченности и восприимчивости при различных значениях параметров системы. При доминировании в системе ферромагнитного взаимодействия кривая полной намагниченности близка к функции Бриллюэна, отвечающей спину 1:

$$\begin{gathered} \mathrm{Br}_S(x) = \frac{2S+1}{2S}\coth\frac{2S+1}{2S}x - \frac{1}{2S}\coth\frac{x}{2S}, \\ \mathrm{Br}_1(x) = \frac{3}{2}\coth\frac{3}{2}x - \frac{1}{2}\coth\frac{x}{2}. \end{gathered} \tag{3.55}$$

Вклад синглетных состояний в этом случае пренебрежимо мал, и система в целом проявляет типичные парамагнитные свойства. В пределе $\beta \to 0$ ($T \gg \hbar\omega_0$) её восприимчивость удовлетворяет закону Кюри $\chi \approx 1/2T$ и не зависит от параметров распределения обменной энергии (3.45). В случае преобладания антиферромагнитной связи димеров ($J < 0$) при малых β система также остаётся парамагнитной, однако её намагниченность уменьшается относительно функции Бриллюэна, поскольку отдельные димеры оказываются в синглетном состоянии.

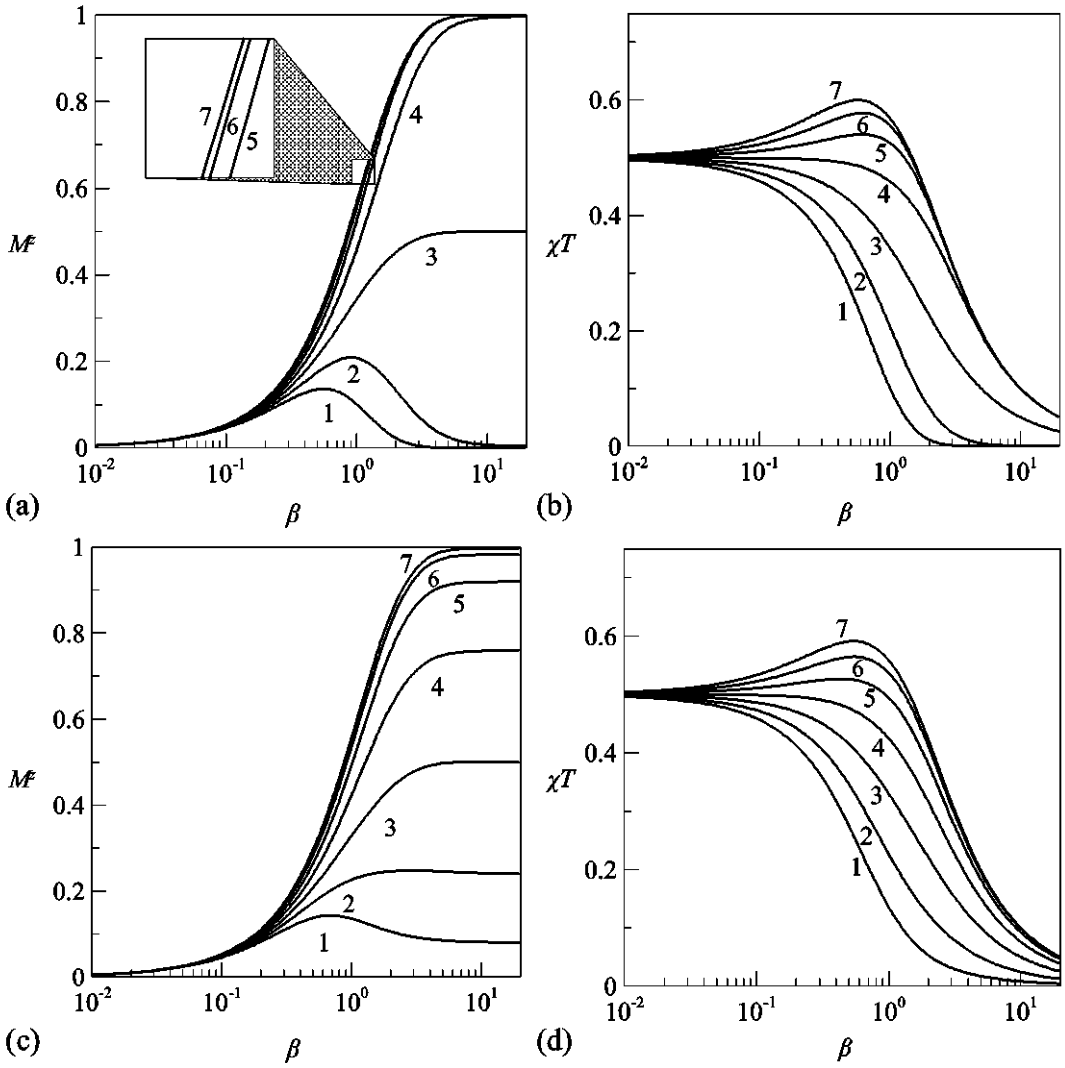


Рис. 3.7. Намагниченность (*а, в*) и статическая продольная восприимчивость (*б, г*) димерной системы при различных J_0 и дисперсии: *а, б*) – $\Delta = 0.5$; *в, г*) – $\Delta = 2.0$; значениям J_0 соответствуют: кривая 1 – (–3.0); 2 – (–2.0); , 3 – (–1.0); 4 – 0.0; 5 – 1.0; 6 – 2.0; 7 – 3.0

Разложение намагниченности (3.53) при малых β показывает, что зависимость от среднего значения обменной энергии проявляется во втором порядке, тогда как влияние параметра дисперсии – только в третьем:

$$M^z \approx \frac{\beta}{2} + \frac{J_0}{8}\beta^2 - \left(\frac{1}{3} + \frac{J_0^2}{4}\Delta^2\right)\frac{\beta^3}{8}. \tag{3.56}$$

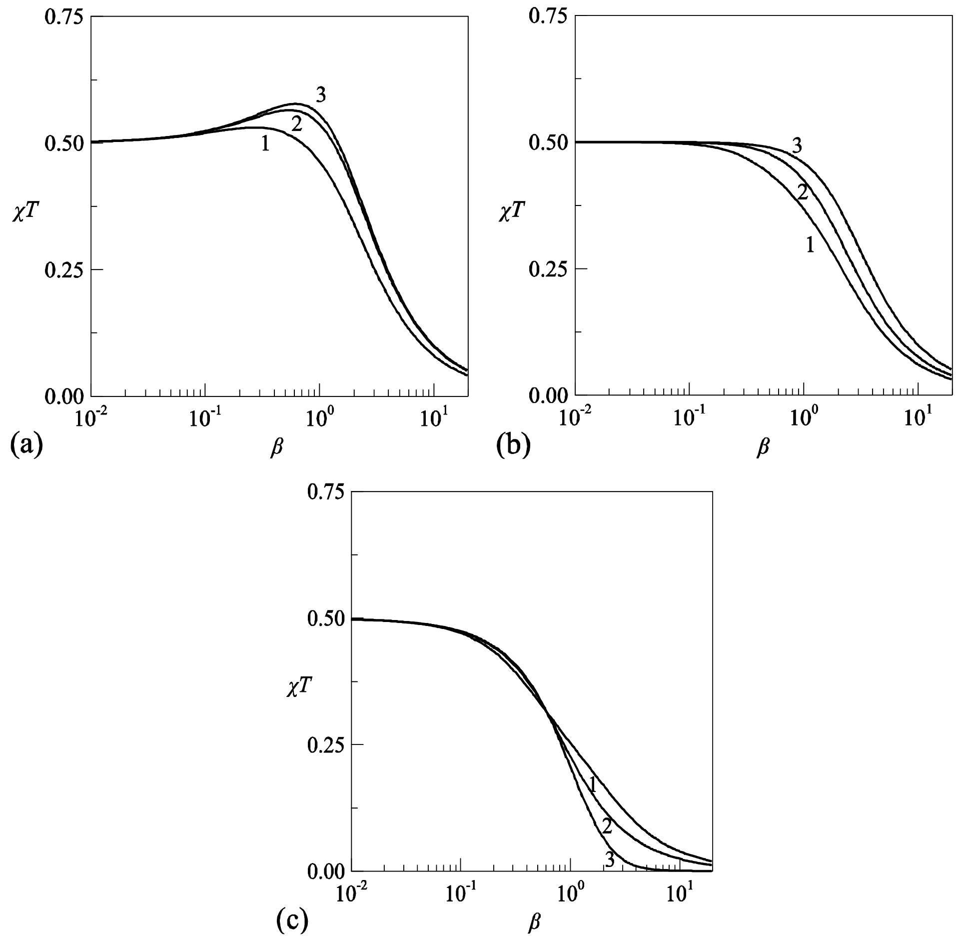


Рис. 3.8. Влияние дисперсии энергии взаимодействия Δ на восприимчивость димерной системы при J_0: *а*) – 1.0; *б*) – 0.0; *в*) – –1.0; линия 1 на графиках соответствует Δ = 2.0, 2 – Δ = 1.0, 3 – Δ = 0.5

В противоположном случае, когда $\beta > |J_0|^{-1}$, становится существенным влияние знака энергии взаимодействия димеров. Магнитная восприимчивость системы вблизи отмеченного значения β начинает отклоняться от закона Кюри; при ФМ взаимодействии – в сторону бóльших значений, при АФМ восприимчивость падает (см. рис. 3.8).

Увеличение параметра дисперсии распределения (3.45) приводит к изменению намагниченности насыщения. Из рис. 3.8 видно, что система с $J_0 > 0$ теряет намагниченность, тогда как при преобладании антиферромагнитного взаимодействия, напротив, возникает ненулевая намагниченность насыщения. Обе эти особенности определяются вкладом димеров, знак энергии которых противоположен среднему J_0.

В пределе низких температур $T \ll \hbar\omega_0$ при $J_0 > 0$ отклонение намагниченности от насыщения описывается экспоненциальной функцией:

$$M^z \approx 1 - \exp(-\beta). \qquad (3.57)$$

Уменьшение намагниченности начинает проявляться со значения $\beta > 2(1 + J_0) / \Delta^2$, и связано с усилением вклада синглетных состояний димеров с наибольшей по модулю отрицательной энергией обмена. При $J_0 < 0$ низкотемпературная асимптотика намагниченности также определяется экспоненциальной функцией:

$$M^z \approx \exp(\beta(1 - |J_0|)). \qquad (3.58)$$

На рисунке 3.9 показаны изолинии намагниченности системы димеров на плоскости «температура–магнитное поле». Видно, что размер области, где реализуется состояние насыщения, существенным образом зависит от средней энергии J_0. При высоких температурах $T > \hbar\omega_0$ система независимо от параметров проявляет типичные парамагнитные свойства, а при достаточно низких температурах в сильном поле ($\beta \sim 1$) всегда реализуется магнитное насыщение. Дисперсия энергии взаимодействия внутри димеров определяет размытие границ переходов (ср. рис. 3.9, *д*, *е*).

Если в ансамбле димеров доминирует антиферромагнитное взаимодействие, существует некоторое характерное критическое значение магнитного поля. Если поле слабее этой величины и дисперсия обменной энергии достаточно невелика, то в системе отсутствует равновесная намагниченность. Это связано с влиянием тепловых флуктуаций и вкладом синглетных состояний. Оценки показывают, что для системы атомов водорода на проводящей подложке критическая температура, ниже которой намагниченность системы равна нулю, имеет величину порядка $1 - 10$ К. Таким образом, в свойства описанного димерного материала вносят синглетные состояния спинов с нулевым полным спином, что сходно с явлением метамагнетизма [197, 202, 206].

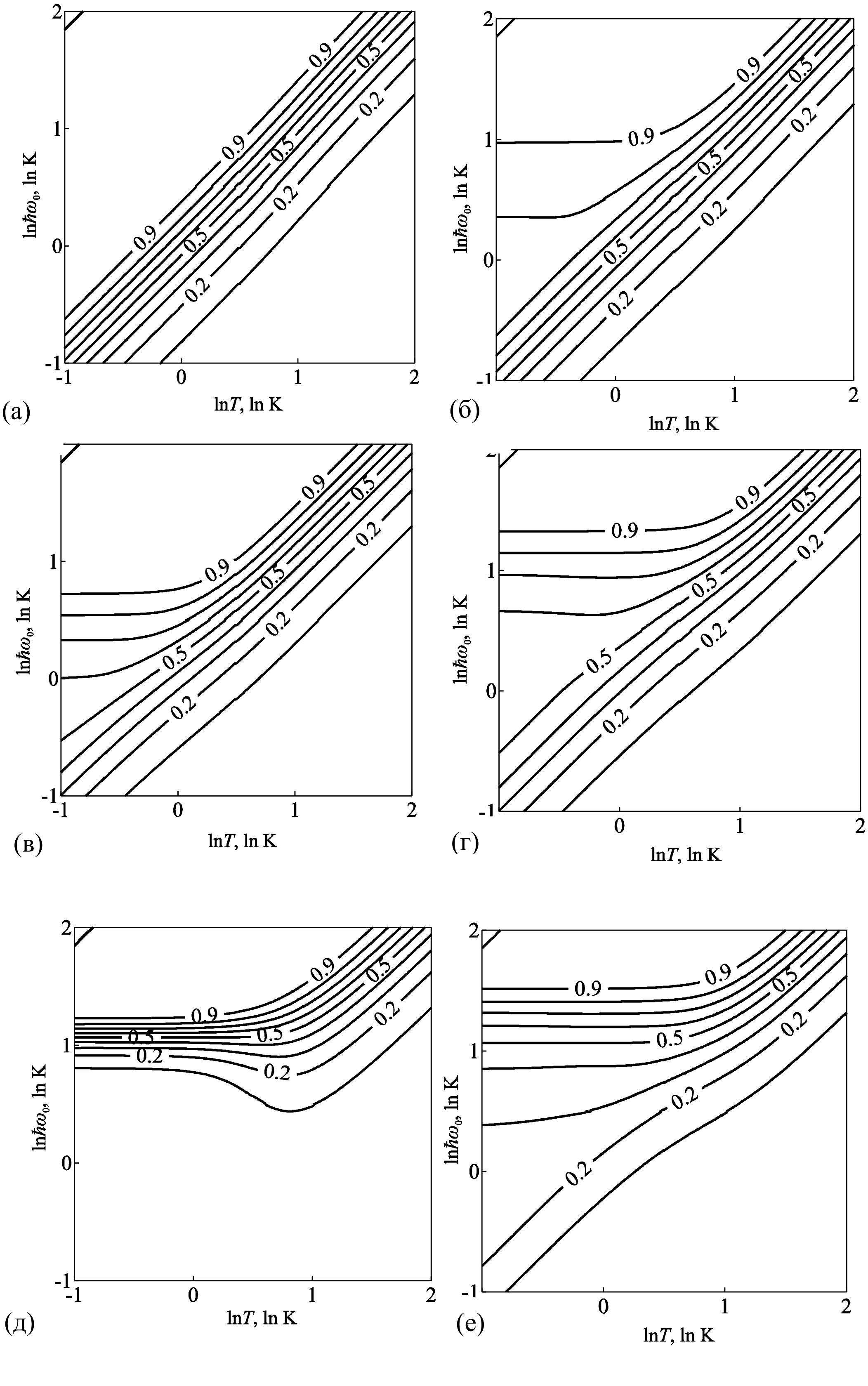


Рис. 3.9. Изолинии намагниченности димерной системы с различными J_0 и Δ: J_0 = 1.0 мэВ (*а, б*); 0.0 мэВ (*в, г*); –1.0 мэВ (*д, е*); панели *а, в, д* соответствуют Δ = 0.5 мэВ, панели *б, г, е* – Δ = 2.0 мэВ; на графиках изображены изолинии от 0.1 до 0.9 с шагом 0.1

3.5.3. Логнормальное распределение размера димеров

В качестве альтернативной модели вместо распределения (3.45) рассмотрено также логнормальное распределение размера димеров

$$\rho_r = \frac{1}{\sqrt{2\pi\Delta_r^2 r^2}} \exp\left(-\frac{1}{2\Delta_r^2} \ln^2 \frac{r}{r_0} \right), \tag{3.59}$$

где Δ_r – безразмерный параметр дисперсии, а r_0 – медианный размер димера. Обменная энергия в этом случае считается согласно (3.40). Намагниченность системы может быть рассчитана, как и выше, согласно (3.50). Для РККИ-взаимодействия при вычислении используется следующая аппроксимация:

$$\begin{aligned} &k_F r < 1: \quad J(r) = \frac{C}{3}, \\ &k_F r < a: \quad J(r) = C\frac{k_F r \cos k_F r - \sin k_F r}{(k_F r)^4}, \\ &k_F r \geq a: \quad J(r) = 0. \end{aligned} \tag{3.60}$$

В первую очередь, это позволяет исключить расходимость энергии взаимодействия при малом межчастичном расстоянии. Взаимодействием на большом расстоянии пренебрегается в силу кубического убывания энергии по мере роста *r*. В частности, если $a \approx 14$, то зависимость (3.60) содержит 4 экстремума энергии взаимодействия. Выбор нижнего интервала $k_F r < 1$ весьма произволен, однако тестовые расчёты показывают, что его влияние на итоговые результаты незначительно.

Оценка для намагниченности при использовании логнормального распределения размеров также может быть получена по методу Лапласа. При этом функция $S(x)$ равна $\beta J(r)\Delta_r^2 - \ln^2(r/r_0)/2$, а параметр $\lambda = 1/\Delta_r^2$. Оценка имеет следующий вид:

$$M^z \approx \frac{2\sinh\beta \exp(\beta J(r_0))}{1 + (1 + 2\cosh\beta)\exp(\beta J(r_0))}. \tag{3.61}$$

На рис. 3.10 показаны рассчитанные зависимости намагниченности димерного композита при различных значениях параметров *C*, Δ_r и r_0. Полагая, что характерная энергия Ферми составляет величину около 1 эВ, можно оценить импульс Ферми как $k_F = 5.4$ нм$^{-1}$. Тогда верхняя граница интервала в (3.60) $a = 14$ отвечает размеру димеров около 2.6 нм. Нижняя граница, которая задаёт максимум энергии взаимодействия $C/3$, соответствует межчастичному расстоянию 0.18 нм.

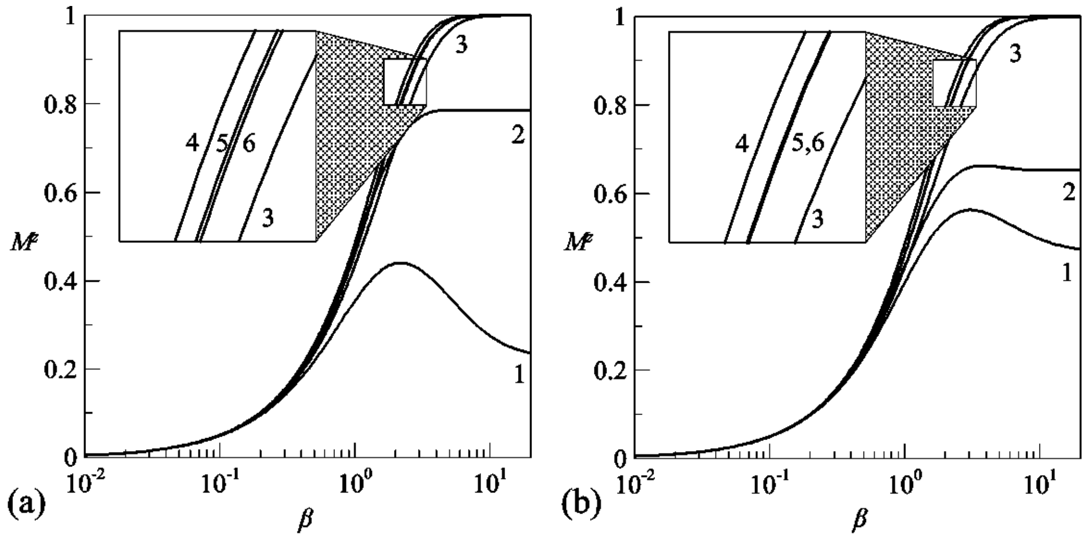


Рис. 3.10. Влияние медианного размера димеров и его дисперсии на равновесную намагниченность системы с логнормальным распределением размера: *а*) – $\Delta_r = 0.1$; *б*) $\Delta_r = 1.0$; кривая 1 – $r_0 = 0.2$ nm, $C = 5$; 2 – $r_0 = 0.2$ nm, $C = –5$; 3 – $r_0 = 0.5$ nm, $C = 5$; 4 – $r_0 = 0.5$ nm, $C = –5$; 5 – $r_0 = 1.0$ nm, $C = 5$; 6 – $r_0 = 1.0$ nm, $C = –5$

Величина и знак РККИ-взаимодействия $J(r_0)$, отвечающего медианному размеру, в данной модели имеют такой же эффект на намагниченность и восприимчивость системы, как и среднее значение J_0 в предыдущем случае (см. рис. 3.7). Большая положительная величина обменной энергии даёт кривую, близкую к функции Бриллюэна, тогда как сильное антиферромагнитное взаимодействие приводит к нулевой намагниченности при низких температурах. Увеличение размера димеров от 0.2 до 1 нм приводит к ослаблению вклада ближайших ионов, и материал приближается по свойствам к чистому парамагнетику. Уменьшение параметра дисперсии Δ_r приводит к локализации функции распределения (3.59) вокруг медианного размера r_0. В этом случае реализация парамагнитного состояния возможна, если димеры имеют достаточный размер.

3.6. Численное моделирование возникновения немагнитного состояния в магнетике с конкурирующими взаимодействиями

3.6.1. Модель Изинга

В разделе 3.5 рассматривалась задача о равновесной намагниченности и построении фазовой диаграммы ансамбля димеров со случайным обменным взаимодействием в парах. Аналогичное поведение следует ожидать в системе с плотной упаковкой магнитных центров, однако при этом предположение о возможности разбиения системы на независимые димеры неприменимо. Эффективным инструментом для моделирования критических свойств и рассмотрения различных равновесных фаз таких систем являются решёточные модели, в частности – модель Изинга и её аналоги [340]. В литературе приводится большое число численных и аналитических результатов для модели Изинга со взаимодействиями конкурирующих знаков на различных решётках, прежде всего – квадратной, дереве Кэли и решётке Бете. Обобщая их, следует отметить, что помимо парамагнитной и упорядоченной фазы типа ферро- и антиферромагнетика, на решётках потенциально возможно существование фактически бесконечного числа дополнительных фаз с дальним ориентационным порядком и нетипичным чередованием спиновых состояний. В частности, даётся подробное описание т.н. суперантиферромагнитных фаз, где паттерн спиновой структуры принимает вид наподобие ↑↑↓↓, ↑↑↑↓↓↓ и др. [340–343], а полная намагниченность решётки равна нулю. На сегодняшний день остаются не до конца выясненными закономерности переходов между такими фазами. Подобные состояния структурно сходны с немагнитной фазой димерной системы, которая отвечает антисимметричной спиновой волновой функции при противоположной ориентации спинов в димере [206].

Для установления соответствия между суперантиферромагнитной фазой модели Изинга и немагнитным состоянием димерного ансамбля в настоящей работе проведена серия численных расчётов равновесных состояний системы Изинга на квадратной двумерной решётке в отсутствие внешнего поля, с учётом противоположных по знаку взаимодействий в первой и второй координационной сферах. Численная реализация основана на алгоритме Метрополиса [344].

Рассматривается гамильтониан спиновой системы с взаимодействием типа РККИ в отсутствие внешнего магнитного поля:

$$\hat{H} = -\sum_{j \neq k} J_{jk} \hat{\boldsymbol{S}}_j \cdot \hat{\boldsymbol{S}}_k, \tag{3.62}$$

где $\boldsymbol{S}_j$ – оператор спина, расположенного на узле с номером j, J_{jk} – энергия РККИ-обменного взаимодействия (3.40). Принято, что магнитные центры образуют упорядоченную структуру с периодом, сопоставимым или большим периода решётки подложки. Убывание энергии РККИ по кубическому закону определяет необходимость учёта взаимодействия как минимум во второй координационной сфере. Величина взаимодействия в зависимости от концентрации магнитных ионов изменяется не только по величине, но может изменить и свой знак, поэтому возможна реализация конкурирующих ФМ и АФМ взаимодействий, определяющих сложную структуру упорядочения.

Гамильтониан модели Изинга, соответствующий (3.62), учитывающий взаимодействие между соседями первого и второго порядков, имеет следующий вид:

$$\hat{H} = -J_0 \left[\sum_{\langle j \neq k \rangle} \sigma_j \sigma_k + \gamma_2 \sum_{\langle\langle j \neq k \rangle\rangle} \sigma_j \sigma_k + \dots \right], \tag{3.63}$$

где σ_j – целочисленные величины, принимающие значения ± 1, J_0 – параметр интенсивности обменного взаимодействия ближайших ионов, γ_2 – нормированная на J_0 интенсивность взаимодействия во втором порядке. Эта модель при необходимости может быть расширена и на большее число координационных сфер.

Моделирование равновесных состояний спиновой системы выполнено на квадратной решётке размерами 128×128 ячеек с периодическими граничными условиями. Для каждого значения температуры задавалось случайное начальное распределение ориентации спинов, и далее в большинстве расчётов выполнялись ~$2\cdot10^4$ шагов метода Монте-Карло. Тестовые расчёты критических температур фазовых переходов и равновесных спиновых конфигураций с учётом взаимодействия только ближайших соседей подтверждают корректность работы реализованного алгоритма как в случае ФМ, так и АФМ взаимодействия. Дополнительно были выполнены тестовые расчёты с 10^4–10^6 итераций. Вычисленное значение намагниченности и внутренней энергии системы на использованной решётке стабилизируется уже после 10^4 шагов с точностью не хуже 10 %.

3.6.2. Переходы в системе с ферромагнитным взаимодействием ближайших соседей

При положительном значении J_0 ближайшие спины в решётке взаимодействуют ферромагнитным образом. В пренебрежении следующими порядками в системе реализуется стандартная картина с фазовым переходом «ферромагнетик – парамагнетик» при безразмерной температуре $T_c \approx 2.27$ (рис. 3.11, зависимости построены при $J_0 = 1$).

Здесь и далее в этом разделе температура даётся в безразмерных единицах отношения J/k_B, k_B – постоянная Больцмана. При $\gamma_2 > 0$ критическая температура системы ожидаемо возрастает, тогда как качественных изменений в температурной зависимости намагниченности и внутренней энергии не наблюдаются, и материал остаётся типичным ферромагнетиком.

Учёт АФМ взаимодействия во второй координационной сфере ($\gamma_2 < 0$) интегрально ослабляет взаимодействие в решётке, что обусловливает снижение критической температуры (см. рис. 3.11, *а*). В области низких температур в расчётах наблюдается метастабильное состояние с нулевой или малой намагниченностью. Оно обнаруживается при задании случайной ориентации спинов на решётке и не проявляется при положительных γ_2. Температура перехода между ним и состоянием насыщения T_a возрастает по мере усиления АФМ-вклада. При $\gamma_2 \approx -0.5$ она совпадает с точкой Кюри, и состояние насыщения становится недостижимым.

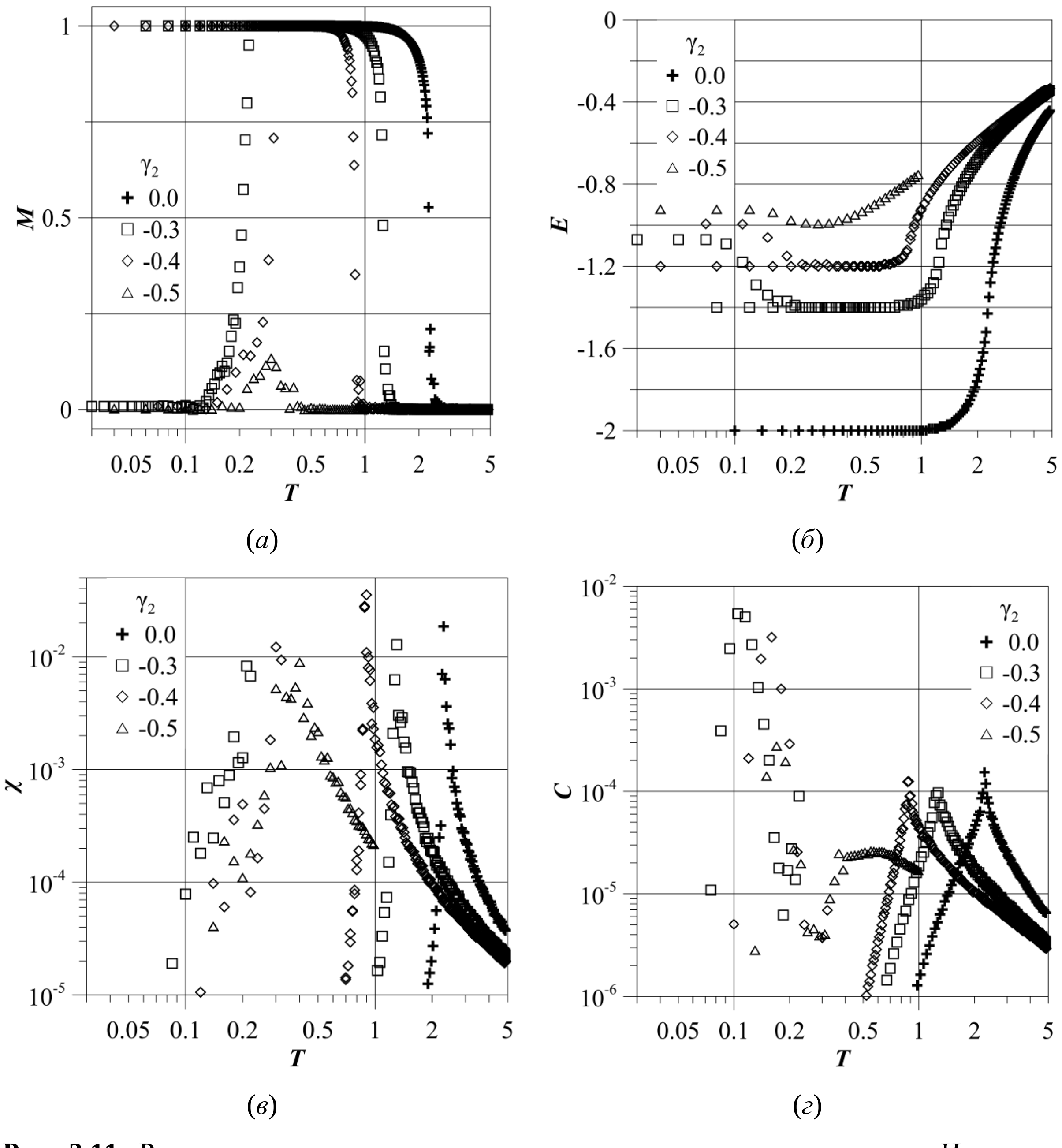


Рис. 3.11. Рассчитанные температурные зависимости параметров модели Изинга на квадратной решётке с ФМ взаимодействием ближайших соседей ($\gamma_2 = 0.0$) и АФМ взаимодействием во 2-й координационной сфере в отсутствие внешнего поля: *а* – намагниченность; *б* – средняя энергия; *в* – восприимчивость; *г* – теплоёмкость

В табл. 3.1 приведены значения безразмерной температуры описанных переходов в зависимости от величины параметра γ_2. В первом приближении они могут быть аппроксимированы линейными функциями:

$$\begin{aligned} T_c &\approx 3.80\gamma_2 + 2.36, \quad R^2 > 0.99, \\ T_a &\approx -0.589\gamma_2, \quad R^2 \approx 0.87. \end{aligned} \tag{3.64}$$

Точка пересечения этих зависимостей $\gamma_{2,crit} \approx -0.538$ определяет предельное γ_2, при котором конкуренция двух взаимодействий полностью подавляет реализацию состояния с ненулевой намагниченностью.

Таблица 3.1. Вычисленные границы существования различных фаз в модели Изинга с конкурирующими ФМ и АФМ взаимодействиями, моделирование на квадратной решётке размерами 128×128

$\boldsymbol{\gamma_2}$	0.0	–0.1	–0.2	–0.3	–0.4	–0.5
$\boldsymbol{T_c}$	2.27	1.99	1.64	1.28	0.89	0.38
$\boldsymbol{T_a}$	–	0.06	0.09	0.14	0.18	0.36

На рис. 3.12 показаны типичные равновесные конфигурации спинов, рассчитанные при $\gamma_2 = -0.3$. При низких температурах и однородном начальном состоянии реализуется насыщение, а при случайном – структура из доменов, обладающих противоположной намагниченностью. АФМ взаимодействие приводит к разбиению решётки на отдельные домены с противоположными ориентациями намагниченности. Доменная структура реализуется в среднем уже после 10^5 итераций численного метода и остаётся устойчивой при продолжении расчёта как минимум до 10^6 итераций.

Из рис. 3.12 видно, что размер доменов увеличивается с ростом температуры. Это происходит до тех пор, пока энергия системы, разбитой на домены, не совпадёт с энергией однородного состояния насыщения. Далее флуктуации приводят к разрушению этого состояния и переходу в неупорядоченную парамагнитную фазу. Отличительной особенностью описываемой системы является наблюдаемый рост размера доменов с ростом температуры. В системе с только ферромагнитным взаимодействием при низких температурах всегда реализуется состояние насыщения, а размер доменов, напротив, уменьшается по мере приближения к точке Кюри. Состояние с разбиением на домены в данной системе является метастабильным и не отвечает глобальному минимуму энергии.

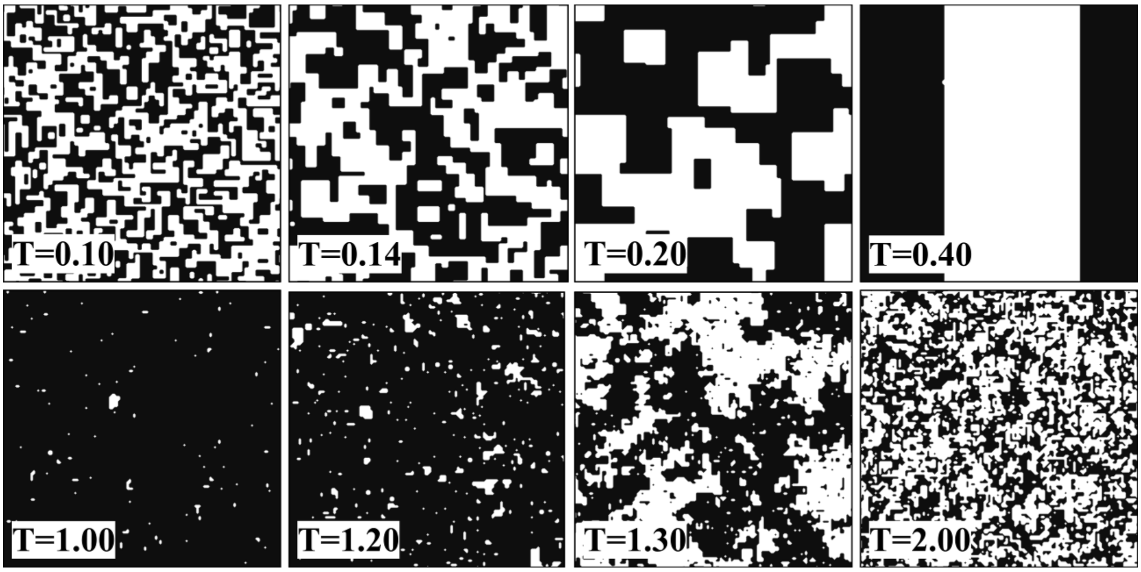


Рис. 3.12. Пример последовательности равновесных конфигураций модели Изинга при учёте взаимодействий первого и второго порядка при $\gamma_2 = -0.3$; при моделировании задавалось случайное начальное состояние

Размер доменов может быть определена из условия минимума суммарной энергии системы, включающей энергию насыщения E_s, энергию собственного магнитного поля E_M, создаваемого решёткой во внешней области, и доменных границ E_W. Их удельные значения, приведённые к одному узлу решётки, могут быть оценены следующим образом [341]:

$$E_S = -\frac{J_0}{2}\left(Z + \gamma_2 Z_2\right), \quad E_M = M^2\rho, \quad E_W = J_0\left(1 + \frac{1}{2}\gamma_2 Z_2\right)\frac{\lambda}{\rho^{1/2}},$$

где Z, Z_2 – первое и второе координационное числа решётки (для квадратной они оба равны 4), M – равновесная намагниченность внутри домена, $\rho = n/N$ – относительный размер доменов, включающих в среднем n узлов решётки, $\lambda \sim 4/N^{1/2}$ – оценка среднего периметра доменов.

Минимум суммарной удельной энергии достигается при среднем размере домена:

$$\rho^* = \left[\frac{J_0 \lambda}{2M^2} \left(1 + \frac{\gamma_2 Z_2}{2} \right) \right]^{2/3}.$$

Из оценки для ρ^* следует, что при $\gamma_2 < 0$ равновесный размер домена уменьшается по отношению к системе, где имеется только ферромагнитное взаимодействие. Критическое значение параметра γ_2, при котором доменная структура становится соизмерима с постоянной решётки, и система переходит в парамагнитную фазу, имеет величину порядка

$$\gamma_{2,crit} \sim -\frac{2}{Z_2},$$

что для квадратной решётки даёт –0.5. Эта оценка согласуется со найденным численно значением –0.538, характеризующим границу исчезновения состояния с ненулевой намагниченностью.

3.6.3. Переходы в системе с антиферромагнитным взаимодействием ближайших соседей

Исследование системы с преобладанием АФМ взаимодействия выполнено аналогично предыдущему. В пренебрежении взаимодействием второго порядка в ней имеет место переход «антиферромагнетик – парамагнетик» с температурой Нееля $T_N \approx 2.3$ при $J_0 = -1$. На рис. 3.13 показаны температурные зависимости теплоёмкости, поскольку на них ярко выражена точка перехода. В качестве начального состояния для метода Монте-Карло задавалась однородная структура с «шахматным» чередованием значений спина ±1.

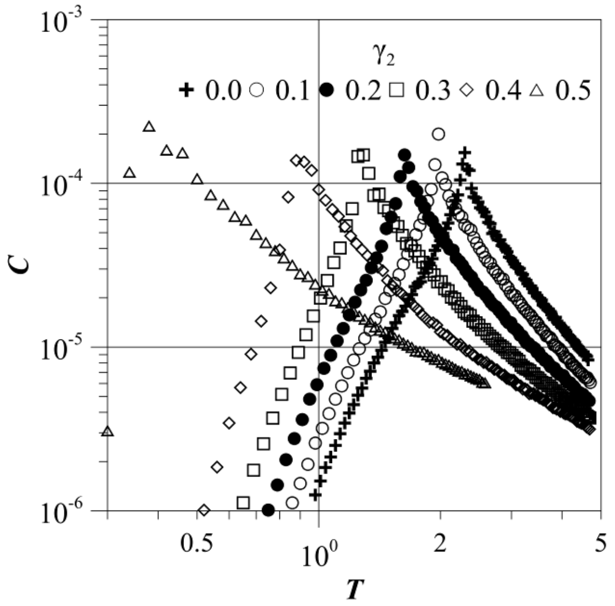


Рис. 3.13. Рассчитанные температурные зависимости удельной теплоёмкости модели Изинга на квадратной решётке с антиферромагнитным взаимодействием ближайших соседей и ферромагнитным – во второй координационной сфере, при отсутствии внешнего поля

Видно, что по мере роста $\gamma_2 > 0$ критическая температура системы постепенно уменьшается. Качественные изменения в структуре равновесного состояния при варьировании γ_2 не наблюдаются. Дополнительные фазовые переходы при доминировании в системе антиферромагнитного взаимодействия не выявляются. Значения температуры Нееля для различных γ_2 приведены в таблице 3.2, а их аппроксимация линейной зависимостью выглядит следующим образом:

$$T_N \approx -3.76\gamma_2 + 2.35, \quad R^2 > 0.99. \tag{3.65}$$

Таблица 3.2. Рассчитанная температура Нееля в модели Изинга с АФМ и ФМ взаимодействиями, решётка 128×128

γ_2	0.0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
T_N	2.29	1.97	1.64	1.29	0.90	0.37

Благодаря свойствам симметрии модели Изинга значения критической температуры с совпадают с T_c для ферромагнитной системы, что дополнительно подтверждает корректность работы численного метода.

Величина удельной теплоёмкости системы также совпадает с ФМ случаем (ср. рис. 3.11, *г* и рис. 3.13). Варьирование начального условия при моделировании не позволило достоверно установить существование в системе метастабильного состояния, в отличие от описанной выше системы с ферромагнитным взаимодействием ближайших соседей.

Таким образом, выполненное моделирование системы Изинга с конкурирующими взаимодействиями при отсутствии внешнего поля демонстрирует возможность реализации дополнительной метастабильной фазы с энергией, промежуточной между состоянием насыщения и парамагнитной фазой. Благодаря антиферромагнитному взаимодействию во второй координационной сфере в ферромагнитной системе реализуется разбиение на домены. При преобладании на решётке антиферромагнитного обмена дополнительное ферромагнитное взаимодействие в следующем порядке не приводит к изменению структуры системы, и обусловливает только сдвиг температуры Нееля.

3.7. Заключение

В приближении сплошной среды реализована спин-волновая модель динамики двухкомпонентного низкотемпературного парамагнетика – магнитного композита, образованного внедрением или осаждением примесных атомов в объём (на поверхность) парамагнитной решётки. Выведено дисперсионное соотношение для связанных линейных волн намагниченности в двух компонентах материала. Подсистемы с различными гиромагнитными отношениями определяют существование двух ветвей спектра волновых решений, соответствующих прецессии решётки и примесных магнитных моментов.

Рассчитан спад свободной индукции поперечной намагниченности под действием прямоугольного радиочастотного импульса, а также спектр и асимптотика возникающего сигнала. В спектре сигнала присутствуют две главные частоты, обусловленные различием свойств компонент системы.

Анализ возникновения модуляционной неустойчивости и параметрических резонансов в системе не производился. В рамках рассмотренной модели устойчивыми являются только яркие солитоны. Свойства обменного и дипольного взаимодействий приводят к дестабилизации других решений. Динамика волн намагниченности зависит от среднего значения обменного взаимодействия между примесными ионами, и потому варьирование концентрации ионов в различных областях решётки открывает потенциальную возможность создания спиновых волноводов или ловушек, пригодных для управления элементами спинтроники.

Представлены результаты разработки модели димерного магнитного композита из пар магнитных ионов на проводящей немагнитной подложке. Модель позволяет описать свойства реальных систем с низкой концентрацией примесных атомов со спином 1/2. Показано, что в зависимости от свойств димеров, которые на практике определяются плотностью ионов, осаждённых на поверхности, система может как быть парамагнетиком, так и переходить в немагнитное состояние, определяемое возможностью перехода отдельных димеров в состояния с нулевым полным спином. В сильном магнитном поле независимо от параметров реализуется насыщение.

Перспективным примеров таких композитов являются конструкции из магнитных ионов, осаждённых на углеродную подложку, в частности, водорода, азота или фтора. Ряд работ даёт приближённые значения энергии РККИ-взаимодействия ближайших примесных ионов в таком материале. В частности, для водорода реализуется взаимодействие с энергией около +7 мэВ для ближайших ионов. В системе на базе фтора взаимодействие – антиферромагнитное с энергией около –9 мэВ. Эти значения соответствуют расстоянию между магнитными атомами около 0.2 нм, и определяют параметр интенсивности *C* [261, 262]. Соответственно, следует ожидать, что водород-углеродный композит будет парамагнитным, тогда как фторуглеродный материал станет проявлять свойства, обусловленные переходов в димеров в немагнитные состояния. Уменьшение концентрации примесных ионов будет приводить к увеличению размера димеров и реализации парамагнитных свойств композитов.

Существование устойчивой доменной структуры и более сложных картин упорядочения композита с конкурирующими взаимодействиями демонстрирует потенциальную возможность его для разработки устройств систем хранения и передачи информации. Наличие взаимодействий различных знаков в рассмотренной системе на базе решёточной модели Изинга имеет дестабилизирующий характер, и обусловливает реализацию состояний с околонулевой намагниченностью, существование которых качественно согласуется с результатами расчётов для димерной модели.

Глава 4. Численное моделирование намагниченности примесной подсистемы

В настоящей главе представлены результаты численного моделирования динамики намагниченности ансамбля примесных атомов в составе двухкомпонентного низкотемпературного парамагнетика, в рамках осреднённого подхода, который использует реализацию прямых квантовомеханических расчётов динамики кластеров малой размерности и построения сигнала намагниченности макроскопической системы как суммы сигналов от отдельных невзаимодействующих кластеров. Метод предложен и реализован в ряде работ И. Г. Шапошникова, Ф. С. Джепарова, Е. К. Хеннера, В. К. Хеннера и А. Клоца [273–275]. Изучено изменение суммарного сигнала при варьировании параметров функции распределения размера кластеров. Для отдельных случаев получены аналитические оценки наблюдаемой намагниченности материала.

4.1. Динамика намагниченности ансамбля парамагнитной примеси на поверхности сферической диамагнитной оболочки

Отдельным значимым вопросом в свойствах углеродных наноструктур являются их динамические магнитные свойства. Задача описания магниторезонансного отклика атомов примеси на поверхности оболочки является относительно сложной для построения аналитической модели ввиду того, что она включает большое число атомов, случайным образом распределённых на поверхности сферы. Размер ансамбля напрямую определяет быстро растущую размерность гильбертова пространства состояний системы, что ограничивает возможности прямого численного моделирования спиновой динамики на основе квантово-механической модели с непосредственным построением энергетического спектра и базиса собственных функций.

В настоящей работе реализован упрощающий подход, основанный на моделировании характеристик отдельных кольцевых спиновых кластеров малой размерности и различного радиуса. Полученные для отдельных колец зависимости затем объединяются для получения модельного описания магнитных свойств системы, в которой магнитные ионы распределены на поверхности сферы заданного радиуса. При этом предполагается, что справедлив принцип суперпозиции, а взаимодействием отдельных кольцевых кластеров пренебрегается. Проведено также тестирование численного алгоритма для моделирования спиновых систем на основе прямого решения квантово-механической задачи.

4.1.1. Теоретическая модель

В качестве базовой теоретической модели системы используется спиновый гамильтониан [93, 94], включающий зеемановскую энергию и дипольное взаимодействие:

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\sum_j S_j^z + \frac{p_d}{4}\sum_{j\neq k}\left[\frac{\boldsymbol{S}_j\cdot\boldsymbol{S}_k}{r_{jk}^3} - \frac{3\left(\boldsymbol{S}_j\cdot\boldsymbol{r}_{jk}\right)\left(\boldsymbol{S}_k\cdot\boldsymbol{r}_{jk}\right)}{r_{jk}^5}\right],\quad p_d = \frac{\hbar\gamma S}{\omega_0 a_0^3}, \tag{4.1}$$

где $\boldsymbol{S}_j$ – спиновый оператор для частицы с номером j, $\boldsymbol{r}_{jk}$ – радиус-вектор, соединяющий частицы j и k, r_{jk} – его модуль, p_d – параметр относительной интенсивности дипольного взаимодействия, определяемый гиромагнитным отношением магнитных центров и минимальным расстоянием между ними. Множители 1/2 и 1/4 перед слагаемыми определяются величиной спина частиц в моделируемой системе, равной 1/2. Гамильтониан нормирован на энергию Зеемана $\hbar\omega_0$, поэтому ларморовская частота системы в безразмерных единицах равна 1.

Спиновые операторы заданы матрицами размерности $2^N\times2^N$, которые генерируются с помощью тензорного произведения Кронекера:

$$S_j^\alpha = \underbrace{I\otimes I\otimes\ldots\otimes\sigma_\alpha\otimes\ldots\otimes I}_{N\ \text{матриц}},\qquad \alpha = x, y, z, \tag{4.2}$$

где I – единичная матрица 2×2:

$$I = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix},$$

σ_α – соответствующая координате матрица Паули:

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix},$$

расположенная среди всех N матричных сомножителей на позиции с номером j. Результирующий гамильтониан (4.1) также задаётся матрицей размерности $2^N \times 2^N$, соответствующей размерности отдельных спиновых операторов.

4.1.2. Геометрия моделируемых кластеров

В настоящей работе реализованы серии расчётов для кластеров различной конфигурации, прежде всего – кольцевых структур (рис. 4.1), интерес к которым обусловлен реализацией работ в рамках исследования сферических углеродных нанооболочек, на поверхности которых осаждается примесь, и кубических кластеров с фиксированным или случайным объёмом с заданной функцией распределения (рис. 4.2). Выбранные структуры, в силу простой геометрии, допускают детальное аналитическое описание, что также позволяет контролировать достоверность полученных численно результатов и получить аналитические оценки для суммарной намагниченности системы.

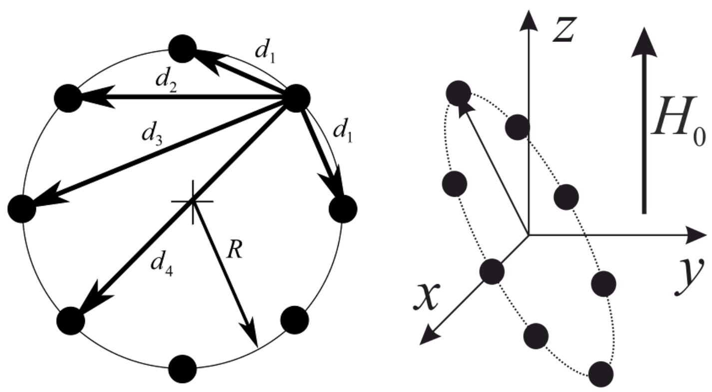


Рис. 4.1. Структура кольцевого спинового кластера (на примере системы 8 частиц) и его ориентация относительно внешнего поля

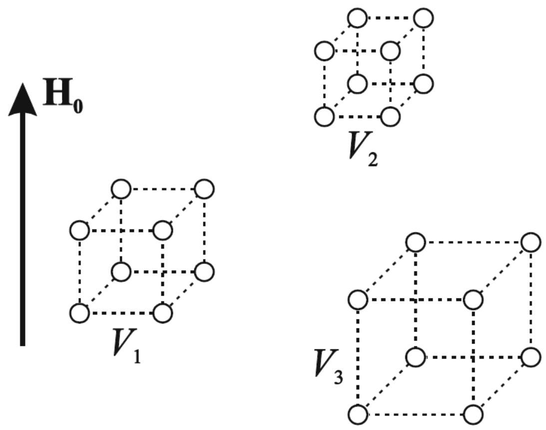


Рис. 4.2. Структуры и объёмы кубических кластеров

В случае кольцевого спинового кластера заданного радиуса (рис. 4.1) предполагается, что магнитные моменты равномерно распределены по кольцу, и это определяет вполне конкретные межчастичные расстояния r_{jk}. Преимущественно были рассмотрены системы, включающие 6 и 8 спинов. Выбор таких размерностей обусловлен оптимальностью времени расчёта (см. описание численного метода ниже). Ряд симуляций выполнен для систем из 10 и 12 частиц. Рассматривались кольца, плоскость которых ориентирована под различными углами относительно внешнего поля. Для предельных случаев – поворот ортогонально полю (все частицы лежат в плоскости *XY*) и вдоль поля (частицы – в плоскости *XZ*) – методов моментов выполнены также аналитические расчёты свойств огибающих.

Межчастичные расстояния в 6-спиновом кольце равны:

$$d_1 = R, \quad d_2 = \sqrt{3}R, \quad d_3 = 2R, \tag{4.3}$$

а в 8-спиновом, соответственно:

$$d_1 = \sqrt{2-\sqrt{2}}R, \qquad d_2 = \sqrt{2}R, \qquad d_3 = \sqrt{2+\sqrt{2}}R, \qquad d_4 = 2R. \tag{4.4}$$

Помимо полного численного моделирования, точная информация об устройстве системы позволяет реализовать также прямой расчёт второго и четвёртого моментов спектра намагниченности на основе известных общих теоретических выражений [93, 94].

Анализ спектра и релаксации намагниченности для системы кластеров, образованных осаждёнными или внедрёнными в некоторый материал магнитными ионами, выполняется на основании результатов моделирования одиночных структур. Подобный подход впервые реализован в работах [273, 274] – для моделирования спектра сигнала поперечной намагниченности использовано сложение спектров, соответствующих спиновым кластерам с конечным числом частиц, случайно расположенным в пространстве. В совокупности в указанных работах они имитируют элемент разбавленного магнитного полупроводника. Взаимодействием между отдельными спиновыми кластерами пренебрегается.

Такое приближение позволяет уменьшить размерность пространства состояний моделируемой системы и реализовать расчёты без высоких затрат ресурсов и применения высокопроизводительной вычислительной техники. С другой стороны, таким образом вносится погрешность в определение суммарных функций отклика и времени релаксации всего углеродного композита, но можно ожидать, что её относительное значение сопоставимо с энергией дипольного взаимодействия, и полный учёт межчастичных взаимодействий не вызовет значительных качественных изменений в динамике намагниченности системы.

4.1.3. Моделирование сигнала намагниченности

Использованный для вычисления эволюции намагниченности численный метод ранее опубликован в работе [275] и основывается на общих базовых принципах квантовой механики. Программный код реализован на языке Python с применением библиотеки NumPy [345]. Тестовая версия реализации алгоритма предоставлена для использования соавтором работы [275] А. Клоцем и адаптирована к моделированию структур различного размера и конфигурации с учётом дипольного и обменного взаимодействия между частицами.

В работе [274] приводится листинг аналогичного алгоритма, написанного на языке АЛГОЛ-60. Реконструкция этого программного кода, проведённая на FORTRAN-90, показала его полную работоспособность и возможность применения для моделирования реальных физических задач, несмотря на необходимость доработки процедуры моделирования магниторезонансного спектра и оптимизации скорости вычислений, а также расходования оперативной памяти системой.

На первом этапе вычислений осуществляется диагонализация матрицы гамильтониана (4.1) с вычислением соответствующих собственных векторов. Для этого используется функция linalg.eigh библиотеки NumPy, основанная на стандартных функциях библиотеки LAPACK [345]. Полученный массив собственных значений определяет уровни энергии системы E_j, а собственные векторы – волновые функции стационарных состояний спиновой системы φ_j.

Далее для вычисления волновой функции используется начальное состояние, в котором все спины ориентированы вдоль оси x. Оно определяется уравнением

$$S_x \left|\Psi_0\right\rangle = \frac{N}{2}\left|\Psi_0\right\rangle, \tag{4.5}$$

и задаётся набором из 2^N ортогональных единичных векторов. Оно может быть также представлено в виде линейной комбинации функций φ_j:

$$\left|\Psi_0\right\rangle = \sum_j C_j \left|\varphi_j\right\rangle. \tag{4.6}$$

Коэффициенты C_j равны скалярным произведениям состояния (5) и собственных функций:

$$C_j = \left\langle \varphi_j \middle| \Psi_0 \right\rangle. \tag{4.7}$$

Зависящая от времени волновая функция определяется следующим образом:

$$\left|\Psi\right\rangle(t) = \sum_j \exp\left(-iE_j t\right) C_j \left|\varphi_j\right\rangle, \tag{4.8}$$

Экспоненциальные множители выражают эволюцию стационарных состояний φ_j. Наконец, найденная волновая функция позволяет непосредственно вычислить наблюдаемое значение поперечной намагниченности:

$$M_x(t) = \frac{1}{2}\left\langle \Psi(t) \middle| S_x \middle| \Psi(t) \right\rangle, \tag{4.9}$$

где матрица x-компоненты полного спина определяется как сумма всех одночастичных спиновых операторов:

$$S_x = \sum_j S_j^x, \tag{4.10}$$

отдельные слагаемые вычислены согласно (4.2).

Все представленные ниже расчёты кривых спада свободной индукции для кольцевых кластеров производились на стандартной рабочей станции с центральным процессором Intel® Core™ i5-9400 с 6 физическими вычислительными ядрами и максимальной тактовой частотой 3.8 ГГц в параллельном режиме. Объём оперативной памяти рабочей станции составляет 16 Гб. При работе был использован интерпретатор языка Python 3.8.3 (64 бита) в составе оболочки Spyder версии 4.1.4 (распространяются по свободным лицензиям Python Software Foundation License и MIT License, соответственно). При вычислениях работает автоматическое перераспределение нагрузки между всеми логическими потоками процессора. В ходе каждого расчёта производилось моделирование намагниченности от начального состояния при $t = 0$ до момента безразмерного времени $t = 2 \cdot 10^3\ \omega_0^{-1}$ с шагом 0.2, в каждой реализации рассчитывается 10^4 точек.

4.1.4. Отклик намагниченности колец различного радиуса

Численное моделирование кривых спада свободной индукции демонстрирует типичные сигналы, соответствующие наблюдаемым в экспериментах [94]. На рис. 4.3 показаны результаты расчётов для колец различного радиуса, состоящих из 8 частиц, при отсутствии обменного взаимодействия. Наблюдается вполне естественная зависимость времени релаксации от радиуса кольца – его увеличение приводит к ослаблению межчастичного взаимодействия и сопутствующему замедлению релаксации. В таблице 4.1 приведены значения времени релаксации, оцениваемые по точке первого обращения в нуль огибающей намагниченности.

Таблица 4.1. Приближенные значения времени релаксации намагниченности для кластера из 8 частиц при различных радиусах и ориентации плоскости кольца

R	t_{XY}	t_{XZ}
0.5	11.0	18.0
1.0	80.0	140
1.5	240	460
2.0	~600*	$1.10\cdot10^3$
2.5	$\sim1.00\cdot10^3$*	$\sim2.00\cdot10^3$*

* Приближённое значение, получаемое экстраполяцией начального спада

При поворотах колец из плоскости XY в плоскость XZ имеет место увеличение времени релаксации (рис. 4.3, *д–з*), что обусловлено изменением структуры дипольного гамильтониана (1), в первую очередь – секулярных членов вида

$$\sum_{j\neq k}\frac{1-3\cos^2\theta_{jk}}{2r_{jk}^3}\left(3S_j^zS_k^z-\boldsymbol{S}_j\cdot\boldsymbol{S}_k\right),$$

где θ_{jk} – угол между вектором r_{jk} и внешним магнитным полем (осью z). Для кольца, лежащего в плоскости XY, множитель $1-3\cos^2\theta_{jk}$ для всех частиц одинаков и равен +1, тогда как во втором случае он может принимать различные значения в интервале от +1 до –2. Данный эффект отражает хорошо известную зависимость времени релаксации от ориентации исследуемого образца [93, 94, 96].

Приведённые в таблице 4.1 зависимости аппроксимируются методом наименьших квадратов следующими формулами с точностью не хуже 0.999:

$$t_{XY}\approx 78.7R^{2.83},\qquad t_{XZ}\approx 139R^{2.94}, \tag{4.11}$$

что позволяет говорить о кубической зависимости времени релаксации от радиуса кольца, определяемой, как и следует ожидать, зависимостью интенсивности дипольного взаимодействия от расстояния.

Важным результатом моделирования низкоразмерных спиновых систем оказывается тот факт, что качественных изменений в начальных этапах эволюции намагниченности не происходит, тогда как ресурсоёмкость моделирования возрастает экспоненциально (рис. 4.4).

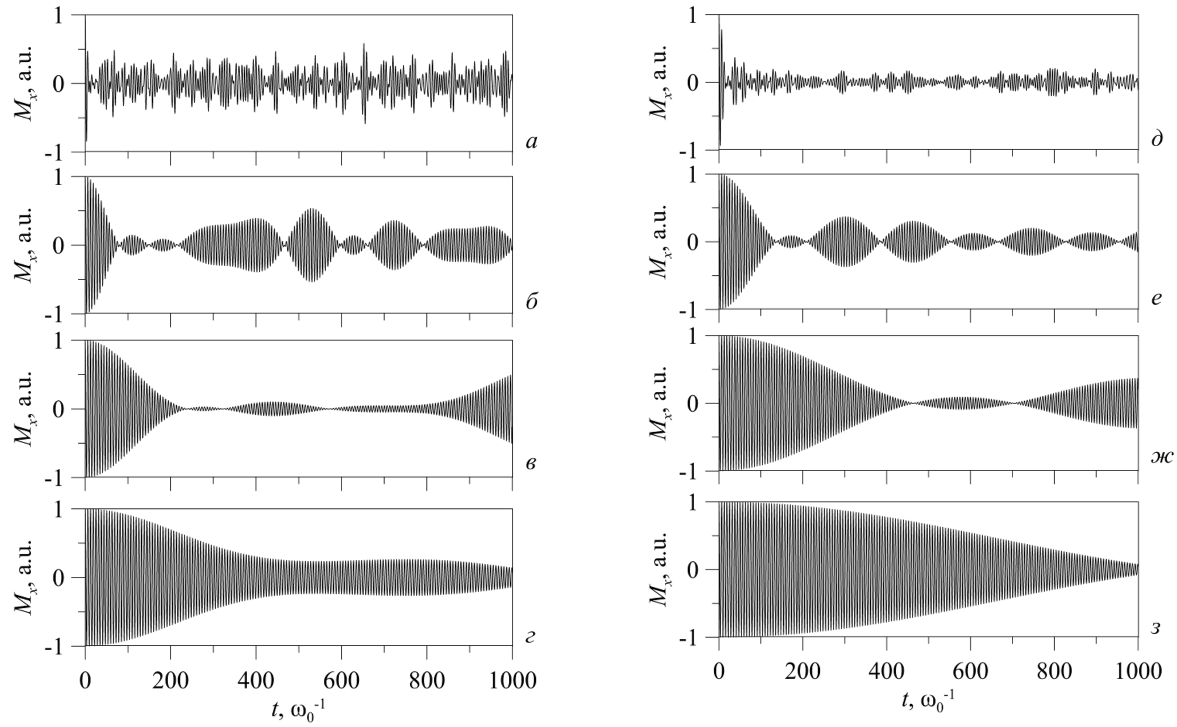


Рис. 4.3. Рассчитанные зависимости поперечной намагниченности для кольцевого спинового кластера из 8 частиц безразмерным радиусом R: а, д – 0.5; б, е – 1.0; в, ж – 1.5; г, з –2.0; слева – кольца, ориентированные в плоскости XY, справа – XZ

На основании этого результата можно принять, что системы размерностью 6–10 частиц можно рассматривать как оптимальные по вычислительным затратам для реализации задачи моделированию отклика крупномасштабной системы – в данном случае сферического спинового кластера. Для реализации модели сферического кластера необходимо просуммировать большое количество отдельных сигналов. С другой стороны, увеличение числа частиц в составе кластера приводит к ослаблению сигнала намагниченности на длительных временах, что корректнее передаёт наблюдаемую в эксперименте картину. Здесь, естественно, не учтены процессы термодинамической релаксации, а наблюдаемый спад намагниченности обеспечивается в первую очередь декогеренцией магнитных моментов относительно упорядоченного начального состояния.

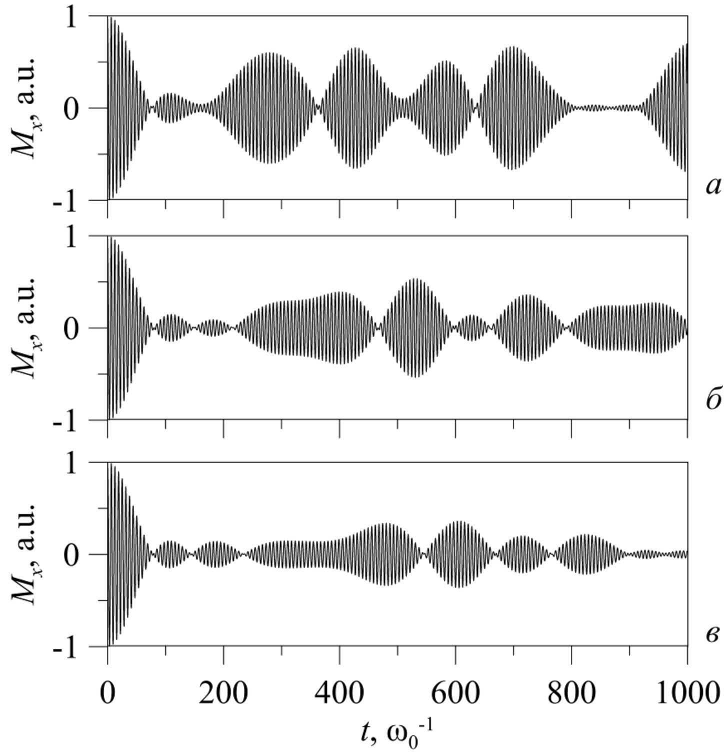


Рис. 4.4. Намагниченность кольцевого спинового кластера при различном числе частиц: а – 6 частиц, R = 0.76; б – 8, R = 1.00; в – 10, R = 1.23. Радиусы колец подобраны так, чтобы минимальное расстояние между частицами во всех случаях было одинаковым (в данном случае d_1 = 0.76)

На рис. 4.5 показаны спектры ССИ, вычисленные по $2^{12} = 4096$ точкам с использованием стандартного алгоритма быстрого преобразования Фурье. Картина качественно и количественно полностью соответствует известным сведениям из теории магнитного резонанса. Ширина главной спектральной линии пропорциональна $1/R^3$, т.е. фактически – интенсивности дипольного взаимодействия. При этом в случае тесного кластера ($R = 0.5$) реализуется множество вкладов с разными частотами, которые ориентировании кольца в плоскости XY образуют упорядоченную тонкую структуру с относительно большим числом спектральных линий, расположенных практически на равных интервалах друг от друга. Для кольца, ориентированного в плоскости XZ, в спектре сигнала чётко выделяются только три пика.

В рассчитанных на данном этапе спектрах не наблюдаются пики вблизи частот 0 и $2\omega_0$, формируемые несекулярными слагаемыми. Это позволяет утверждать о возможности пренебречь ими при моделировании кольцевой структуры, по крайней мере, при выбранных ориентациях кольцевых спиновых структур относительно магнитного поля.

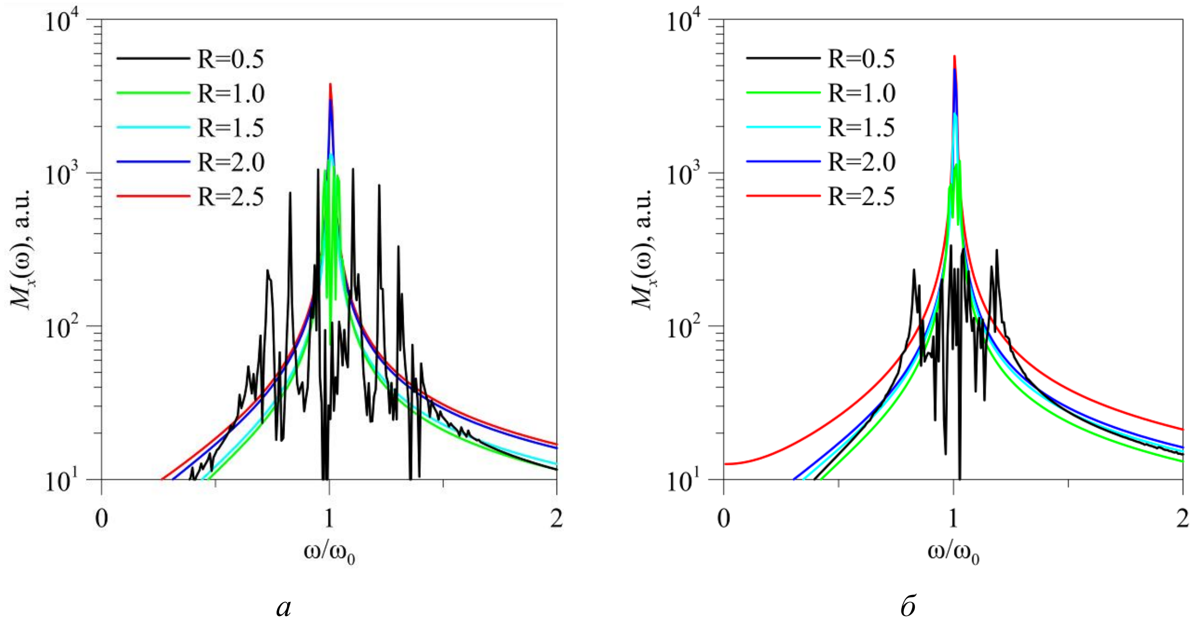


Рис. 4.5. Спектры поперечной намагниченности при различных радиусах колец и их ориентации в плоскости: а – *XY*; б – *XZ*

4.1.5. Расчёт моментов для кольцевой структуры (плоскость XY)

Относительная простота кольцевой геометрии позволяет произвести прямое вычисление второго и четвёртого моментов спектра сигнала намагниченности по приведённым в литературе формулам [94]. Второй момент даётся формулой Ван Флека:

$$M_2 = \frac{3S(S+1)}{4NR^6}\sum_{j\neq k}\left(\frac{1}{d_{jk}^3}\right)^2, \tag{4.12}$$

а для четвёртого момента применимо следующее выражение:

$$\begin{aligned} M_4 = \left(\frac{S(S+1)}{3R^6}\right)^2 \Bigg[\frac{243}{16}\left(\frac{1}{N}\sum_{j\neq k}\left(\frac{1}{d_{jk}^3}\right)^2\right)^2 - \frac{81}{48N}\sum_{j\neq k\neq l}\left(\frac{1}{d_{jk}^3}\right)^2\left(\frac{1}{d_{jl}^3}-\frac{1}{d_{kl}^3}\right)^2 - \\ -\frac{81}{80N}\left(8+\frac{3}{2S(S+1)}\right)\sum_{j\neq k}\left(\frac{1}{d_{jk}^3}\right)^4 \Bigg]. \end{aligned} \tag{4.13}$$

Приведённые формулы для моментов соответствуют кольцу, ориентированному в плоскости *XY*. Для кольца, состоящего из 8 спинов, прямое вычисление даёт следующие значения:

$$M_2 \approx \frac{5.77}{R^6}, \qquad M_4 \approx \frac{68.7}{R^{12}}. \tag{4.14}$$

Отношение моментов составляет 2.06, что свидетельствует о выраженном отклонении формы спектра от гауссовой кривой.

Полученные значения моментов позволяют также вычислить параметры функции Абрагама:

$$F(t) = \exp\left(-\frac{a^2 t^2}{2}\right)\frac{\sin bt}{bt}, \tag{4.15}$$

для кольца с $R = 1$:

$$a \approx 0.813\, p_d, \qquad b \approx 3.92\, p_d.$$

Подстановка полученных параметров в (16) даёт превосходное согласие функции $F(t)$ с сигналом намагниченности при $R = 1$ на временах до 200 ларморовских единиц (рис. 4.6).

Для описания зависимости от радиуса функция (4.15) модифицирована следующим образом:

$$F(t) = \exp\left(-\frac{a^2 t^2}{2R^3}\right)\frac{\sin(bt / R^3)}{(bt / R^3)}. \tag{4.16}$$

Данная зависимость найдена эмпирически подбором показателя степени радиуса для параметра a. Ожидаемая из структуры дипольного взаимодействия зависимость R^6 в знаменателе показателя экспоненты не даёт удовлетворительного согласования с амплитудой рассчитанных сигналов для кольцевых наноструктур.

Оценка времени релаксации T_2, определяемая первым нулём огибающей (4.16), даётся следующим выражением:

$$t_{XY} = \frac{\pi R^3}{b}. \tag{4.17}$$

Она обеспечивает точность оценки времени релаксации в пределах 10–15% для радиусов кольца от 0.5 до 2.5 (таблица 4.2).

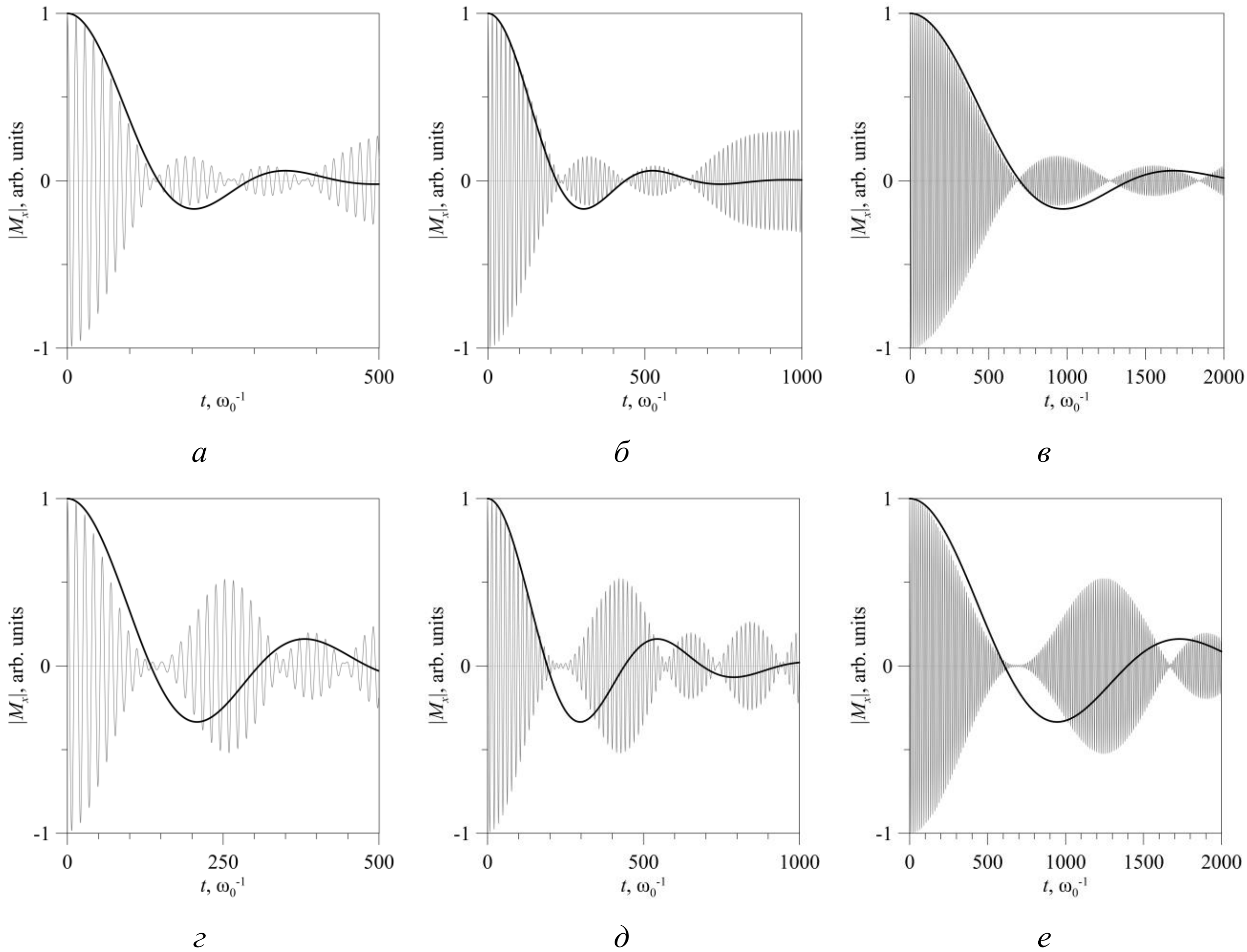


Рис. 4.6. Сопоставление огибающих и смоделированных сигналов ССИ для колец из 8 частиц при ориентации XY: *а* – p_d = 0.01; *б* – p_d = 0.008; *в* – p_d = 0.003; при ориентации XZ: *г* – p_d = 0.01; *д* – p_d = 0.008; *е* – p_d = 0.003.

Таблица 4.2. Рассчитанные по функции огибающей значения времени релаксации намагниченности для кластера из 8 частиц в плоскости *XY* при различных радиусах

R	t_{XY} (огибающая)	t_{XY} (моделирование)
0.5	9.70	11.0
1.0	78.4	80.0
1.5	264	240
2.0	627	~600*
2.5	$1.22 \cdot 10^3$	$\sim 1.00 \cdot 10^3$*

4.1.6. Расчёт моментов для кольцевой структуры (плоскость XZ)

Моменты спектра также вполне вычислимы и для кольца, ориентированного в плоскости *XZ*. Как и выше, рассмотрен кластер из 8 частиц, повёрнутый так, что оси координат проходят через 4 из них (положение частиц отвечает рис. 4.1). В этом случае необходимо учесть различное значение полярного угла между векторами d_{jk} и направлением поля для разных пар спинов (в предыдущем случае для всех он был равен $\pi/2$). Второй и четвёртый моменты принимают следующий вид:

$$M_2 = \frac{3S(S+1)}{4NR^6}\sum_{j\neq k}\left(\frac{1-3\cos^2\theta_{jk}}{d_{jk}^3}\right)^2, \tag{4.18}$$

$$\begin{aligned} M_4 = \left(\frac{S(S+1)}{3NR^6}\right)^2 \Bigg[& \frac{243}{16}\left(\sum_{j\neq k}\left(\frac{1-3\cos^2\theta_{jk}}{2d_{jk}^3}\right)^2\right)^2 - \\ & - \frac{81}{48N}\sum_{j\neq k\neq l}\left(\frac{1-3\cos^2\theta_{jk}}{d_{jk}^3}\right)^2\left(\frac{1-3\cos^2\theta_{jl}}{d_{jl}^3}-\frac{1-3\cos^2\theta_{kl}}{d_{kl}^3}\right)^2 - \\ & -\frac{81}{80}\left(8+\frac{3}{2S(S+1)}\right)\sum_{j\neq k}\left(\frac{1-3\cos^2\theta_{jk}}{d_{jk}^3}\right)^4\Bigg]. \end{aligned} \tag{4.19}$$

Прямое вычисление сумм даёт следующие значения для моментов:

$$M_2 \approx \frac{7.94}{R^6}, \qquad M_4 \approx \frac{94.5}{R^{12}}. \tag{4.20}$$

Отношение M_4/M_2^2 в этом случае равно 1.50, что свидетельствует о существенном отклонении формы спектра от гауссовой кривой. Решения для параметров функции Абрагама (4.15) с такими моментами не существует. Хорошее согласие огибающих с рассчитанными сигналами на начальном интервале эволюции намагниченности даёт подобранная эмпирически зависимость, выраженная функцией Бесселя нулевого порядка:

$$F(t,R) = J_0\left(\frac{bt}{2R^3}\right), \qquad b \approx 3.98\,p_d. \tag{4.21}$$

Она даёт несколько заниженное время релаксации, которое можно оценить по формуле

$$t_{XZ} \approx \frac{4.809R^3}{b}, \tag{4.22}$$

где числовой коэффициент – это удвоенное значение первого нуля функции $J_0(x)$ (≈2.404825…). Рассчитанные отсюда значения времени t_{XZ} сведены в таблицу 4.3. Следует учитывать, что на больших временах функция (4.21) затухает медленнее рассчитанного сигнала.

Таблица 4.3. Рассчитанные по функции огибающей значения времени релаксации намагниченности для кластера из 8 частиц в плоскости *XZ* при различных радиусах

R	t_{XZ} из огибающей	t_{XZ} из моделирования
0.5	15.1	18.0
1.0	121	140
1.5	407	460
2.0	966	$1.10\cdot10^3$
2.5	$1.89\cdot10^3$	$\sim2.00\cdot10^3$*

4.2. Суммирование кривых спада свободной индукции

4.2.1. Скейлинг функции Абрагама

Помимо прямых расчётов для низкоразмерных структур, представляет интерес аналитическое исследование сигнала, получаемого прямым осреднением эмпирических функций Абрагама. Такой результат может служить моделью отклика намагниченности системы, состоящей из локализованных и невзаимодействующих между собой областей макроскопического размера, но с разной плотностью магнитных частиц. Кроме того, данная оценка может быть адаптирована и к описанию спиновых кластеров малых размеров, для которых на начальном этапе в большинстве случаев также имеет место хорошее соответствие между формами огибающей и функции (4.15).

Известно, что моменты функции распределения даются коммутаторами поперечной компоненты полного спина системы и секулярной компоненты гамильтониана:

$$M_{2n} = \frac{(-1)^n}{\mathrm{Sp}\left\{S_x^2\right\}} \mathrm{Sp}\left\{\left[H_1,\left[H_1,\ldots\left[H_1,S_x\right]\ldots\right]\right]^2\right\}, \tag{4.23}$$

где секулярная часть взаимодействия равна

$$\begin{gathered} H_1 = \frac{1}{2}\sum_{j\neq k} \frac{A_{jk}+B_{jk}}{r_{jk}^3}, \\ A_{jk} = s_j^z s_k^z\left(1-3\cos^2\theta_{jk}\right), \qquad B_{jk} = -\frac{1-3\cos^2\theta_{jk}}{4}\left(s_j^+ s_k^- + s_j^- s_k^+\right), \end{gathered} \tag{4.24}$$

Соответственно, выделяя в качестве масштаба межчастичного расстояния характерный размер системы *R*, можно увидеть, что второй и четвёртый моменты зависят от её объёма следующим образом:

$$M_2 \propto \frac{1}{V^2}, \qquad M_4 \propto \frac{1}{V^4}, \tag{4.25}$$

а параметры функции Абрагама, соответственно, просто пропорциональны обратному объёму:

$$M_2 = a^2 + \frac{b^2}{3}, \qquad M_4 = 3a^4 + 2a^2b^2 + \frac{b^2}{5}, \qquad a,b \propto \frac{1}{V}. \tag{4.26}$$

Согласно этому, зависимость функции Абрагама от размера (объёма) системы такова:

$$F(t) = \exp\left(-\frac{a^2t^2}{2V^2}\right)\frac{\sin(bt/V)}{(bt/V)}. \tag{4.27}$$

Выражение (4.27) описывает скейлинг спада свободной индукции при пропорциональном изменении всех размеров системы, происходящем без изменения её пространственной структуры. Противоречие между полученным выражением и аппроксимацией (4.16), предложенной для кольцевых кластеров – различие показателя степени размера системы в знаменателе показателя экспоненты, – по-видимому, связано с двумерной структурой последних, а также с конечным числом спинов в их составе.

4.2.2. Отклик системы кольцевых кластеров

Расчёт поперечной намагниченности для системы, образованной кольцевыми спиновыми кластерами различного размера и ориентации, показывает, что благодаря сдвигам резонансных частот различных колец происходит декогеренция колебаний, и реализуется монотонное затухание поперечной намагниченности (рис. 4.7).

Спад происходит по закону, близкому к экспоненциальному, с характерным временем порядка 10^2 при $R_{max} = 2.5$. Относительная ширина спектральной линии отвечает заданной при моделировании интенсивности дипольного взаимодействия 10^{-2}. Таким образом, параметры спада сигнала и спектра намагниченности определяются средней величиной взаимодействия в системе. Эмпирически время релаксации оценивается через средний радиус:

$$t \sim \frac{\langle R \rangle^3}{p_d}. \tag{4.28}$$

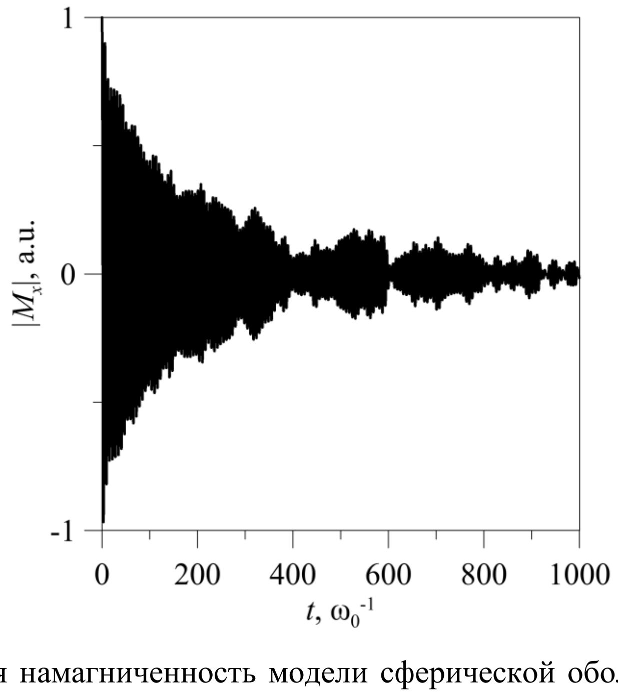


Рис. 4.7. Суммарная намагниченность модели сферической оболочки, вычисленная как суперпозиция сигналов независимых кольцевых спиновых кластеров радиусами 0.50, 1.0, 1.5, 2.0 (см. табл. 6.3), осреднение выполнено для сигналов от структур, ориентированных в плоскостях XY и XZ

4.2.3. Осреднение огибающих для системы кольцевых кластеров

Для практических целей и возможности сопоставления моделирования с экспериментом требуется получить оценку времени релаксации суммарного сигнала намагниченности, а также описать его зависимость от характерного радиуса структуры и интенсивности взаимодействия. Поскольку подразумевается справедливость принципа суперпозиции сигналов намагниченности отдельных кластеров, для этого можно произвести осреднение пробных функций (4.16) по радиусам колец:

$$F(t) = \left\langle F(t,R) \right\rangle \approx \frac{1}{\Delta R} \int\limits_{R_{min}}^{R_{max}} \exp\left(-\frac{(at)^2}{2R^3}\right) \frac{\sin\left(bt/R^3\right)}{bt/R^3} dR. \tag{4.29}$$

Фигурирующий в (4.29) интеграл может быть записан аналитически с применением специальных функций. Это вычисление даёт возможность оценить характерное время релаксации суммарной огибающей. Ниже представлено более подробное описание процедуры осреднения сигнала.

Прежде всего, удобно переписать синус в виде экспоненциальных слагаемых и произвести замену переменной интегрирования:

$$\begin{gathered}
\int\limits_{R_{min}}^{R_{max}} \exp\left(-\frac{(at)^2}{2R^3}\right) \frac{\sin\left(bt/R^3\right)}{bt/R^3} dR = \\
= \int\limits_{R_{min}}^{R_{max}} \frac{R^3}{2ibt} \left[\exp\left(-\frac{(at)^2 - 2ibt}{2R^3}\right) - \exp\left(-\frac{(at)^2 + 2ibt}{2R^3}\right)\right] dR = \\
= \frac{1}{6ibt} \int\limits_{\xi_{min}}^{\xi_{max}} \left[\exp\left(-\frac{(at)^2 - 2ibt}{2}\xi\right) - \exp\left(-\frac{(at)^2 + 2ibt}{2}\xi\right)\right] \xi^{-7/3} d\xi, \\
R = \xi^{-1/3}, \quad dR = -\frac{1}{3}\xi^{-4/3} d\xi.
\end{gathered} \tag{4.30}$$

Задача приводит к необходимости вычисления интегралов вида

$$I = \int \xi^{-7/3} \exp\left(-\frac{\alpha\xi}{2}\right) d\xi, \tag{4.31}$$

где α – комплексный параметр. Явное вычисление этого интеграла возможно с применением разложения экспоненты в ряд Тейлора:

$$I = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n \alpha^n \xi^n}{2^n n!} \int \xi^{n-\frac{7}{3}} d\xi = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n \alpha^n}{2^n n! \left(n - \frac{4}{3}\right)} \xi^{n-\frac{4}{3}}. \tag{4.32}$$

Полученная сумма с поправкой на множитель является представлением нижней неполной гамма-функции [346]:

$$\sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n \alpha^n}{2^n n! \left(n - \frac{4}{3}\right)} \xi^{n-\frac{4}{3}} = \left(\frac{\alpha}{2}\right)^{4/3} \gamma\left(-\frac{4}{3}; \frac{\alpha\xi}{2}\right), \qquad \gamma(\nu, z) = \int_0^z e^{-t} t^{\nu-1} dt. \tag{4.33}$$

В целом, интеграл (4.31) уже может быть приведён к виду (4.33), однако в литературе отмечается, что он сходится только при положительности вещественной части ν, тогда как в рассматриваемой задаче это не так. В то же время, представление функции γ в виде степенного ряда сходится при любых значениях параметра.

Подстановка этого результата в (4.30) даёт явное выражение для средней огибающей сигнала через неполные гамма-функции комплексного аргумента:

$$\begin{gathered} F(t) = \left\langle F(t,R) \right\rangle \approx \frac{1}{2^{4/3} \cdot 6\left(R_{max} - R_{min}\right) ibt} \times \\ \times \left[\left(a^2t^2 - 2ibt\right)^{4/3} \left(\gamma\left(-\frac{4}{3}; \frac{a^2t^2 - 2ibt}{2R_{\max}^3}\right) - \gamma\left(-\frac{4}{3}; \frac{a^2t^2 - 2ibt}{2R_{\min}^3}\right) \right) - \right. \\ \left. - \left(a^2t^2 + 2ibt\right)^{4/3} \left(\gamma\left(-\frac{4}{3}; \frac{a^2t^2 + 2ibt}{2R_{\max}^3}\right) - \gamma\left(-\frac{4}{3}; \frac{a^2t^2 + 2ibt}{2R_{\min}^3}\right) \right) \right]. \end{gathered} \tag{4.34}$$

Непосредственный анализ полученного выражения, очевидно, затруднителен. Однако известно ещё одно, отличное от (4.33), разложение неполной гамма-функции в ряд [346]:

$$\gamma(\nu, z) = z^{\nu} e^{-z} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\Gamma(\nu) z^n}{\Gamma(\nu + n + 1)} = z^{\nu} e^{-z} + \ldots, \tag{4.35}$$

главный порядок которого определяет результирующую амплитуду осреднённого по радиусам сигнала намагниченности в виде гауссовой функции $\exp\left(-a^2t^2 / 2\left\langle R\right\rangle^3\right)$.

Для параметров задачи, рассмотренной в [160, 276], средний радиус кольцевых кластеров составляет величину порядка единицы, а интенсивность взаимодействия – порядка 10^{-2}, что даёт для времени релаксации оценку $2\cdot 10^2\,\omega_0^{-1}$. Она количественно согласуется со временем затухания сигнала, получаемым при прямом сложении рассчитанных численно сигналов (см. рис. 4.7). С другой стороны, аппроксимация огибающей функцией $\exp\left(-t/t_r\right)$ показывает качественно более точное согласие суммарного сигнала с численными результатами (рис. 4.8). Гауссова кривая с таким же собственным временем даёт большее расхождение, а степенной закон t^{-1} в представленном расчёте выражен слабо, что связано с малым числом промоделированных спиновых кластеров.

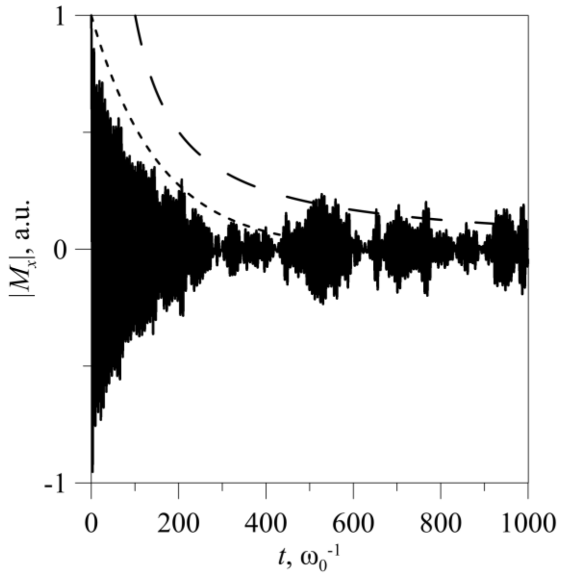


Рис. 4.8. Сравнение модельного сигнала спада намагниченности от суммы кольцевых кластеров различного радиуса, ориентированных в плоскости XY, и аппроксимаций огибающей – $(t/t_r)^{-1}$ (штриховая линия) и $\exp(-t/t_r)$ (пунктирная линия)

Тем не менее, посредством осреднения функции Абрагама по радиусу кольцевой структуры удаётся получить картину суммарного сигнала намагниченности, которая согласуется с результатами прямого суммирования как небольшого числа пробных функций для различных радиусов колец, так и суммирования отдельных сигналов намагниченности, полученных непосредственно при выполнении численного моделирования откликов спиновых систем.

4.2.4. Численное моделирование кубических ячеек

Кольцевые кластеры являются двумерными структурами, и поэтому для них существенна ориентация кольца по отношению к полю. Выше показано, что при повороте плоскости кольца от направления, ортогонального внешнему полю, к параллельному, эмпирическая аппроксимация спада намагниченности функцией Абрагама перестаёт быть применимой (см. рис. 4.6). Кубическая ячейка не обладает такой особенностью, и моделирование на её основе более корректно отображает свойства трёхмерных решёток. Моделирование и последующее суммирование откликов отдельных кубических ячеек даёт оценку сигнала спада намагниченности в двухкомпонентном материале, кластеры в котором имеют преимущественно кубическую форму и близкую друг к другу ориентацию по отношению к внешнему полю.

Для анализа особенностей такой системы с помощью вышеописанного алгоритма [274, 275] проведено численное моделирование ячеек из восьми частиц со спином 1/2, расположенных в вершинах куба, а также для девяти частиц, одна из которых размещалась в центре ячейки. Магнитное поле направлено вдоль ребра куба, а его размер в расчётах варьировался от 0.50 до 2.0 безразмерных единиц с шагом 0.10, всего промоделировано 16 сигналов. Размер ребра 1.0 (единичный объём куба) отвечает относительной интенсивности дипольного взаимодействия, равной 10^{-2}.

На рис. 4.9, *а* показаны примеры рассчитанных сигналов, а на 4.9, *б* – скейлинг времени релаксации, как и ранее, оцениваемого по позиции первого нуля огибающей сигнала (показаны стрелками на 4.9, *а*). Хорошо видно ожидаемое самоподобие вычисленных сигналов – если масштабировать ось времени на d^{-3}, все огибающие полностью совпадут друг с другом. Соответствующим образом по кубическому закону меняется и время релаксации. Полученный скейлинг в полной мере отвечает оценке зависимости (4.27).

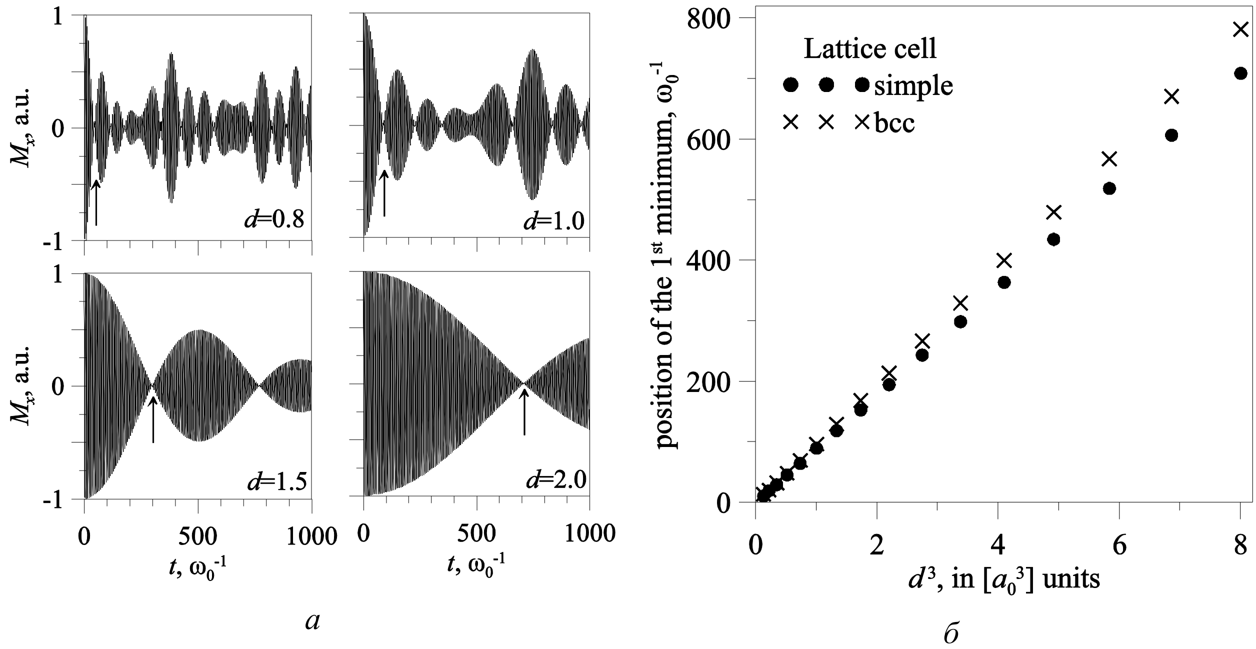


Рис. 4.9. Результаты моделирования спада свободной индукции при масштабировании кубической ячейки: *а*) – сигналы, отвечающие различному размеру ячейки; *б*) – зависимость времени релаксации от размера куба

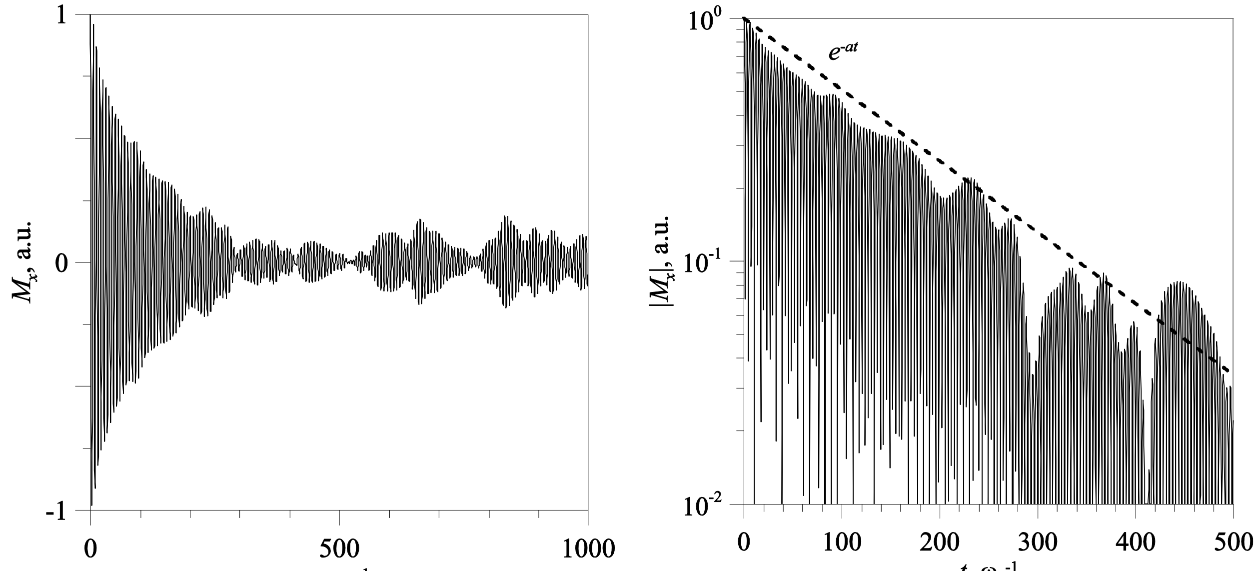


Рис. 4.10. Суммирование сигналов спада свободной индукции для кубических ячеек из восьми частиц в: *а* – линейном, *б* – полулогарифмическом масштабе. Пунктиром показан экспоненциальный тренд exp(–at).

На рис. 4.10 показан результат прямого суммирования и осреднения сигналов намагниченности для ансамбля кубических ячеек различного размера. В полулогарифмическом масштабе видно, что она спадает по закону, близкому к экспоненциальному. Примечательной особенностью является выраженное уменьшение намагниченности на больших временах, хотя кластеры большого объёма, напротив, сохраняют ещё в течение длительного времени. Получается, что сигналы от различных ячеек с высокой точностью компенсируют друг друга. Характерное время релаксации намагниченности вполне отвечает среднему объёму кластера V_0, в данном примере равному 1.25.

Для моделирования систем, в которых имеется отличное от равномерного распределение спиновых кластеров по объёму, можно применить взвешенное среднее от рассчитанных ранее кривых эволюции намагниченности:

$$F_\Sigma(t) \approx \sum_j \rho(V_j) F(t;V_j)\,. \tag{4.36}$$

Значения весовых коэффициентов выбираются в соответствии с заданной плотностью вероятности.

На рис. 4.11 показаны сигналы, моделирующие нормальное распределение объёмов со средним значением $V_0 = 1$ и различными стандартными отклонениями σ. Вполне очевидно, что при увеличении параметра отклонения распределение сглаживается, вклады кластеров различного объёма уравниваются, и суммарный сигнал становится монотонно затухающим, приближаясь к полученному выше результату, отвечающему равномерному распределению (ср. рис. 4.10 и рис. 4.11 для $\sigma = 3$). С другой стороны, при локализации функции распределения (рис. 4.11, $\sigma = 1$) структура суммарной огибающей намагниченности в численной модели приближается к кривой, наиболее соответствующей моде заданного распределения.

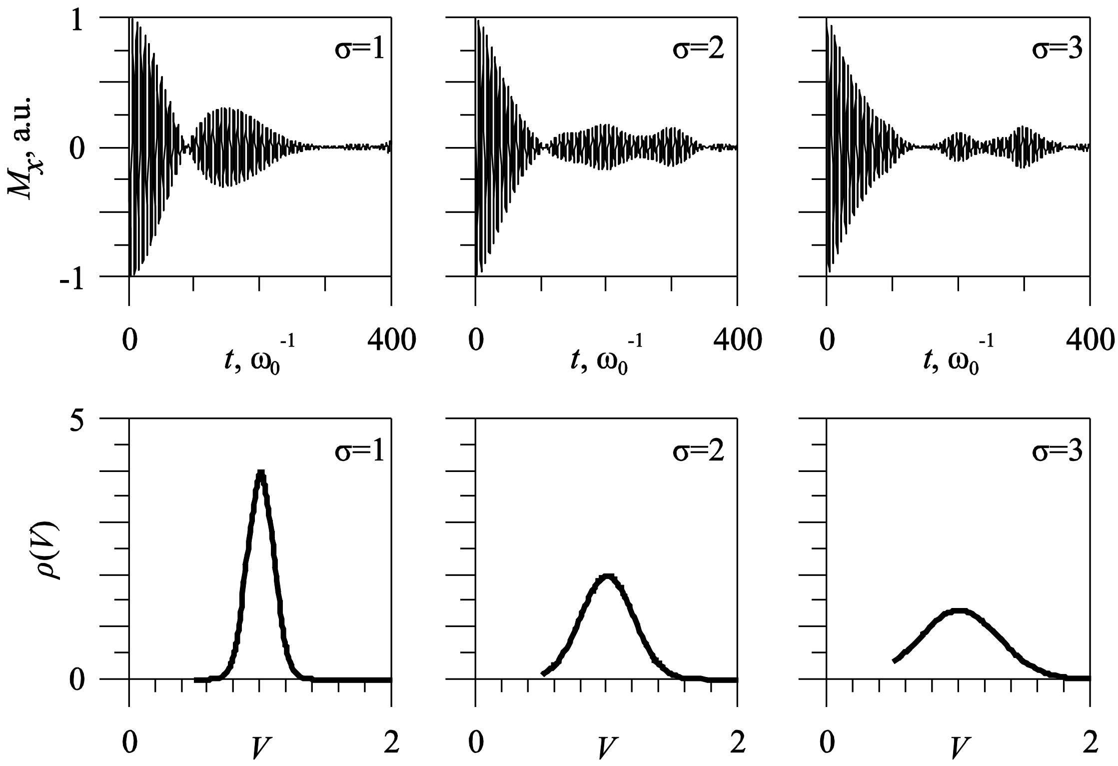


Рис. 4.11. Смоделированные сигналы спада свободной индукции (верхний ряд) для нормального распределения размера кластеров (нижний ряд) при значениях стандартного отклонения σ = 1, 2 и 3

4.2.5. Осреднение функций Абрагама

Применим вышеописанный подход к оценке отклика системы невзаимодействующих спиновых кластеров. Для этого необходимо допустить, что распределение магнитных ионов в решётке приводит к формированию кластеров схожей геометрии, и потому для них можно принять приблизительно равные значения параметров a и b. Если распределение размера кластеров даётся функцией плотности вероятности $\rho(V)$, то суммарная огибающая спада свободной индукции равна

$$F_{\Sigma}(t) = \int dV \rho(V) F(t;V). \tag{4.37}$$

Данный интеграл может быть рассчитан аналитически в виде суммы бесконечного ряда для равномерного распределения:

$$\rho(V) = \frac{1}{V_{max} - V_{min}}, \tag{4.38}$$

где V_{min}, V_{max} – соответственно, минимальный и максимальный объём кластеров, составляющих рассматриваемую разбавленную систему.

Равномерное распределение значений объёма приводит к необходимости вычисления следующего интеграла:

$$F_\Sigma(t)=\frac{1}{bt\left(V_{max}-V_{min}\right)}\int_{V_{min}}^{V_{max}}dV\,V\exp\left(-\frac{a^2t^2}{2V^2}\right)\sin\frac{bt}{V}. \tag{4.39}$$

Здесь можно выполнить замену переменной $\xi=1/V^2$, тогда:

$$\begin{gathered}F_\Sigma(t)=\frac{1}{2bt\sigma^2}\int_0^\infty\frac{d\xi}{\xi^{5/2}}\exp\left(-\frac{\alpha}{\xi}-\beta\xi\right)\sin\left(\lambda\xi^{1/2}\right),\\ \alpha=\frac{1}{2\sigma^2},\qquad\beta=\frac{a^2t^2}{2},\qquad\lambda=bt.\end{gathered} \tag{4.40}$$

Разложение синуса в степенной ряд приводит к представлению

$$\begin{gathered}\sin\frac{\lambda}{V}=\sum_{n=0}^\infty\frac{(-1)^n\lambda^{2n+1}}{(2n+1)!}\frac{1}{V^{2n+1}}=\sum_{n=0}^\infty\frac{(-1)^n\lambda^{2n+1}}{(2n+1)!}\xi^{n+1/2},\\ F_\Sigma(t)=\frac{1}{2bt\Delta V}\sum_{n=0}^\infty\frac{(-1)^n(bt)^{2n+1}}{(2n+1)!}\int_{\xi_{min}}^{\xi_{max}}d\xi\,\xi^{n-3/2}\exp\left(-\frac{(at)^2\xi}{2}\right)\end{gathered}. \tag{4.41}$$

Фигурирующий здесь интеграл представляет выражается через нижние или верхние неполные гамма-функции [346], поэтому суммарный спад свободной индукции может быть записан следующим образом:

$$F_\Sigma(t)\approx\frac{1}{\Delta V}\sum_{n=0}^\infty\frac{(-1)^n2^{n-3/2}b^{2n}}{(2n+1)!a^{2n-1}}t\left[\gamma\left(n-\frac{1}{2};\frac{(at)^2}{2V_{min}}\right)-\gamma\left(n-\frac{1}{2};\frac{(at)^2}{2V_{max}}\right)\right]. \tag{4.42}$$

На рис. 4.12 показан сигнал (13), вычисленный с сохранением первых 100 членов ряда, при $V_{min}=0.10$ и $V_{max}=10.0$. Для сравнения приведена огибающая с параметрами $a=1.21$ и $b=5.87$, которые приближённо соответствуют кривой релаксации намагниченности CaF_2 [94]. Видно, что суммарная намагниченность затухает медленнее, чем сигнал от однородной системы. Это определяется вкладами наибольших по размеру спиновых кластеров.

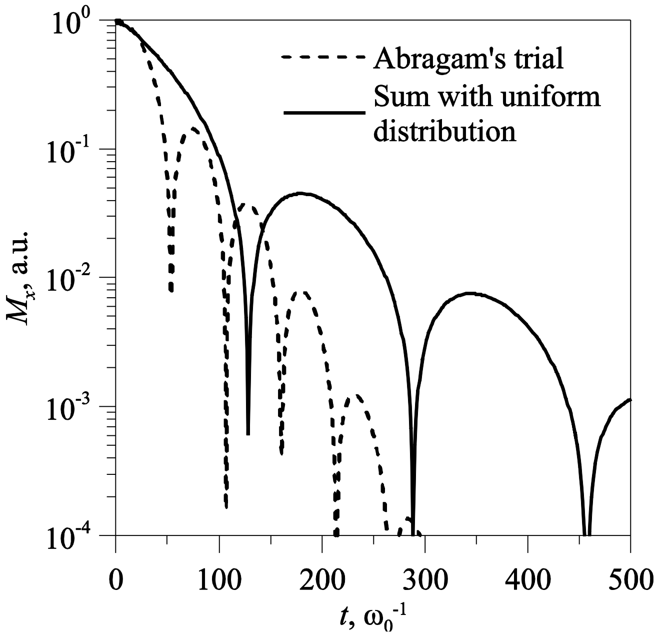


Рис. 4.12. Сравнение ССИ для однородной системы и суммарного сигнала, рассчитанного для ансамбля кубических спиновых кластеров с равномерным распределением их объёма

Поскольку осреднённая зависимость (4.41) представляет собой ряд, состоящий из специальных функций, непосредственно оценить её характер затруднительно. С одной стороны, качественная оценка может быть получена на основе разложения неполной гамма-функции:

$$\gamma(s;x) = x^s \exp(-x) \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\Gamma(s)}{\Gamma(s+k+1)} x^k . \tag{4.43}$$

Видно, что здесь присутствует общий множитель $x^s\exp(-x)$. С учётом значений s и x в рассматриваемой задаче, в старшем порядке разложения поведение осреднённой намагниченности (4.42) даётся функцией Гаусса со степенным множителем. Знакопеременный ряд обусловливает возникновение осциллирующего затухающего сигнала, однако для него в литературе не даётся иного представления, кроме, собственно неполной гамма-функции.

Грубая оценка зависимости даётся заменой интеграла в (4.41) гамма-функцией. Она обусловливает реализацию степенной асимптотики, которая является верхней оценкой для суммарного спада свободной индукции:

$$F_\Sigma(t) \approx \frac{1}{2^{3/2} t \Delta V} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n b^{2n} \Gamma(n+1/2)}{(2n+1)! a^{2n-1} (n-1/2)} \propto \frac{1}{t} . \tag{4.44}$$

Другим примером, где доступно аналитическое вычисление, является система, описываемая распределением Рэлея со средним объёмом $\langle V \rangle$:

$$\rho(V) = \frac{V}{\sigma^2} \exp\left(-\frac{V^2}{2\sigma^2} \right), \qquad \langle V \rangle = \sigma \sqrt{\frac{\pi}{2}}. \tag{4.45}$$

Здесь огибающая суммы сигналов даётся следующим интегралом:

$$F_\Sigma(t) = \int_0^\infty dV \, \frac{V^2}{bt\sigma^2} \exp\left(-\frac{V^2}{2\sigma^2} - \frac{a^2t^2}{2V^2} \right) \sin\frac{bt}{V}. \tag{4.46}$$

Используя ту же замену переменной, что и выше, и раскладывая синус в ряд, находим:

$$F_\Sigma(t) = \frac{1}{2bt\sigma^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n \gamma^{2n+1}}{(2n+1)!} \int_0^\infty d\xi \, \xi^{n-2} \exp\left(-\frac{\alpha}{\xi} - \beta\xi \right). \tag{4.47}$$

Возникший здесь интеграл известен [337]:

$$\int_0^\infty d\xi \, \xi^{n-2} \exp\left(-\frac{\alpha}{\xi} - \beta\xi \right) = 2\left(\frac{\alpha}{\beta} \right)^{\frac{n-1}{2}} K_{n-1}\left(2\sqrt{\alpha\beta} \right),$$
$$\mathrm{Re}\,\alpha > 0, \quad \mathrm{Re}\,\beta > 0.$$

Огибающая в итоге даётся суммой ряда, составленного из модифицированных функций Бесселя второго рода:

$$F_\Sigma(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n b^{2n}}{(2n+1)! \sigma^{n+1} a^{n-1}} t^{n+1} K_{n-1}\left(\frac{at}{\sigma} \right). \tag{4.48}$$

Прямое вычисление найденного ряда показывает, что реализующийся в этом случае суммарный спад свободной индукции при достаточно малом значении σ происходит существенно быстрее, чем релаксация в соответствии с функцией Абрагама (рис. 4.13) при одинаковых параметрах a и b.

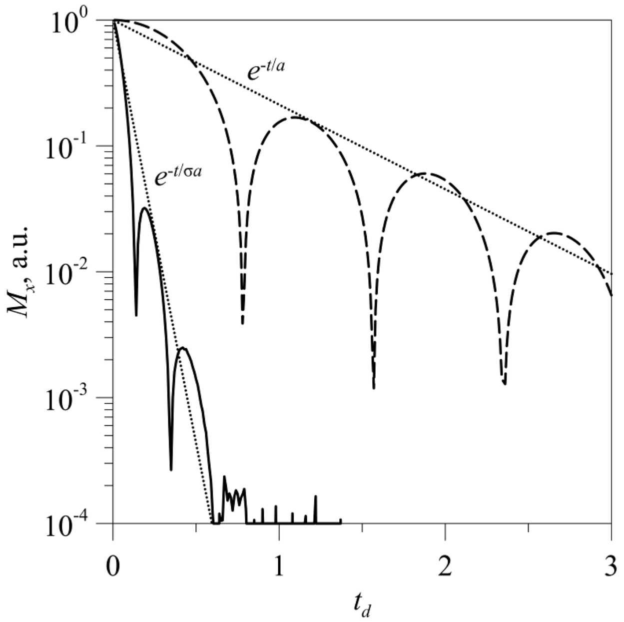


Рис. 4.13. Сопоставление суммарного спада свободной индукции (4.48) (сплошная линия) и функции Абрагама (штриховая линия) для распределения Рэлея. Сумма ряда содержит 800 слагаемых; учет большего их числа позволяет получить гладкую функцию на бо́льших временах. Пунктиром показаны экспоненциальные линии тренда exp($-t/a$) и exp($-t/\sigma a$)

Быстрый спад обусловлен взаимной компенсацией отдельных вкладов от кластеров кратных размеров, а характерный период колебаний намагниченности фактически определяется биениями между сигналами отдельных подсистем. Время спин-спиновой релаксации для разбавленного магнитного композита оказывается пропорциональным параметру a функции Абрагама, фактически – характеристике времени релаксации и интенсивности взаимодействия системы единичного объёма, а также параметру σ, характеризующему средний размер кластеров (см. (4.45)). По мере роста последнего время релаксации замедляется, т.к. возрастают относительные вклады подсистем большого размера, взаимодействие внутри которых мало́ по сравнению с другими. Особенность распределения Рэлея состоит в том, что его медиана и дисперсия определяются только значением σ, и потому на базе такой модели невозможно оценить вклад дисперсии и среднего размера магнитных кластеров независимо.

4.2.6. Осреднение для случайных спиновых конфигураций

Более реалистичным подходом к моделированию сигнала разбавленного магнитного композита является предложенное в работе [274] суммирование сигналов затухания намагниченности, получаемых от случайных пространственных расположений частиц. Можно выделить два основных подкласса задач по условиям генерации координат. Если координаты магнитных центров задаются только целыми числами, то такая система моделирует распределение примеси в кристаллической решётке, узлы которой нумеруются целочисленными координатами. С другой стороны, при снятии этого ограничения возможно моделирование кластеров магнитных частиц, внедрённых в сплошную (характерный масштаб расстояния в этом случае должен превосходить постоянную решётки реального кристалла) или аморфную среду. Оба варианта имеют приложения к реальным задачам создания магнитных композитов.

В описываемых системах, как и в гл. 3, в качестве базового элемента для оценки зависимости удобно рассмотреть димер – пару ионов со спином 1/2, связанных дипольным взаимодействием. Тогда гамильтониан пары в постоянном внешнем поле $\boldsymbol{H}_0$, нормированный на энергию Зеемана, будет имеет следующий вид:

$$\frac{H}{\hbar\omega_0} = -\frac{1}{2}\left(S_1^z + S_2^z\right) + \frac{p_d}{4}\left[\frac{\boldsymbol{S}_1\cdot\boldsymbol{S}_2}{r^3} - \frac{3\left(\boldsymbol{S}_1\cdot\boldsymbol{r}\right)\left(\boldsymbol{S}_2\cdot\boldsymbol{r}\right)}{r^5}\right], \tag{4.49}$$

где $\boldsymbol{r}$ – вектор, направленный от $\boldsymbol{S}_1$ к $\boldsymbol{S}_2$. Спиновые операторы определяются согласно (3.42).

В отличие от димера с обменной связью (3.41), точный расчёт для (4.49) при произвольной ориентации спинов громоздок. Для получения качественной оценки эволюции намагниченности системы достаточно обобщить результаты для простых основных случаев. В частности, если $\boldsymbol{r}$ и $\boldsymbol{H}_0$ коллинеарны, уровни энергии пары равны

$$E_1 = 1 - p_d, \quad E_2 = 2p_d, \quad E_3 = 0, \quad E_4 = -1 - p_d. \tag{4.50}$$

Для поля, ортогонального вектору $\boldsymbol{r}$:

$$E_1 = 1 + \frac{p_d}{2}, \quad E_2 = -p_d, \quad E_3 = 0, \quad E_4 = -1 + \frac{p_d}{2}. \tag{4.51}$$

В суммарный сигнал намагниченности каждая парой спинов по отдельности будет вносит вклады, пропорциональные сумме и разности указанных энергетических уровней. Поэтому наиболее медленная динамика огибающей намагниченности будет содержать компоненты вида

$$F(t) \sim \exp(ip_d t). \tag{4.52}$$

Межчастичное расстояние в системе со случайным распределением частиц по объёму будет варьироваться от некоторой минимальной величины, определяемой межатомным расстоянием в решётке, до очень больших значений, при которых взаимодействием частиц можно фактически пренебречь. Нижнему пределу расстояние отвечает максимальное значение параметра взаимодействия (обозначим его как p_{d0}), а верхнему, соответственно, нулевое.

Поэтому простейшая оценка суммарной намагниченности системы, состоящей из множества частиц со случайными координатами, записывается следующим образом:

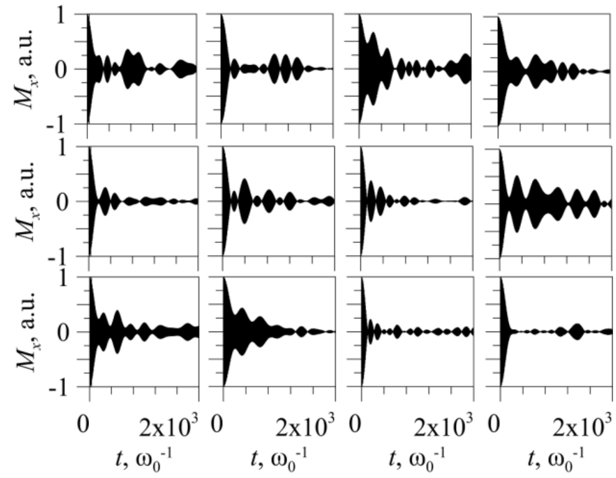
$$F_\Sigma(t) \sim \int_0^{p_{d0}} dp_d \exp(ip_d t) \sim \frac{\exp(ip_{d0}t) - 1}{it}. \tag{4.53}$$

Таким образом, следует ожидать убывания амплитуды поперечной намагниченности спиновой системы по степенному закону t^{-1}, что согласуется с оценкой (4.44), полученной прямым осреднением пробных функций.

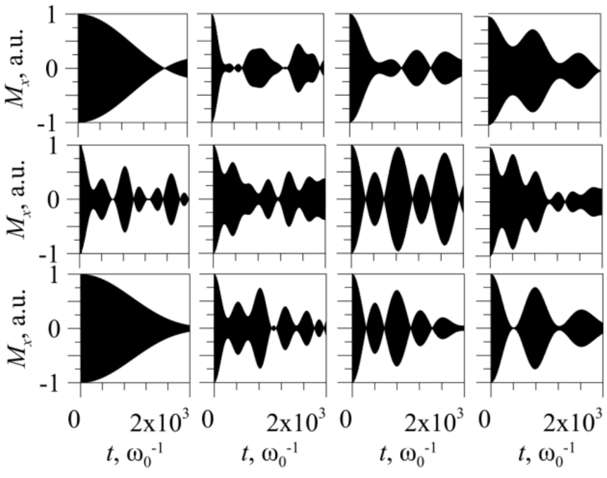
4.2.7. Магнитная примесь в дискретной решётке

С целью верификации оценки (4.53) и установления общих закономерностей, наблюдаемых при суммировании спадов свободной индукции в системе со случайным распределением магнитных ионов по алгоритму, описанному в п. 4.1.3, выполнена серия расчётов динамики намагниченности для магнитных кластеров, состоящей из 7, 8 и 9 частиц со спином 1/2, случайным образом расположенных в пределах участков кубической кристаллической решётки размерами 3^3, 5^3, 7^3 узлов. Постоянная решётки задаёт единицу длины и характерное наибольшее значение интенсивности взаимодействия p_d; в оно принято равным 0.01.

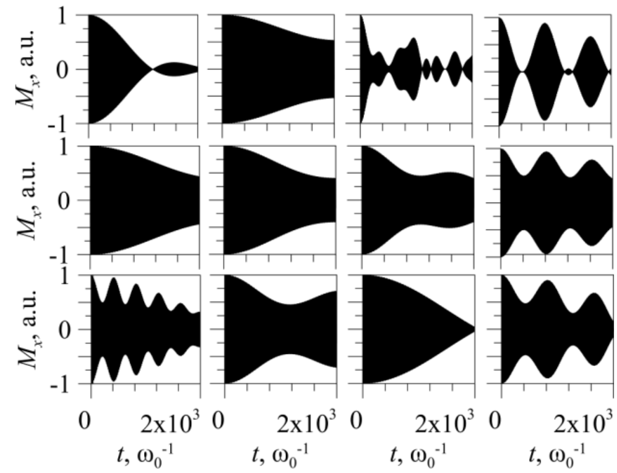
Координаты частиц генерируются с использованием равномерного распределения целых чисел. Для ячейки 3^3 рассчитаны 64 реализации, для двух других – по 1024 реализации; суммарная намагниченность вычислена их прямым осреднением. На рис. 4.14 показаны выборочные сигналы, рассчитанные для отдельных реализаций геометрии системы.



(а)



(б)



(в)

Рис. 4.14. Примеры реализации сигналов спада намагниченности при случайном расположении магнитных частиц на дискретной пространственной сетке размером: а) – 3^3; б) – 5^3; в) – 7^3. Для всех расчётов параметр взаимодействия $\gamma = 0.01$, моделируется динамика кластера из 8 частиц

Видно, что в целом при случайной генерации координат наблюдаемые сигналы для каждой реализации уникальны. В качестве универсальных особенностей динамики можно отметить появление сигналов различных комбинационных частот, которые обусловлены сложением характерных колебаний типа (4.52) от наиболее тесных групп (с наибольшей вероятностью – пар) частиц [189].

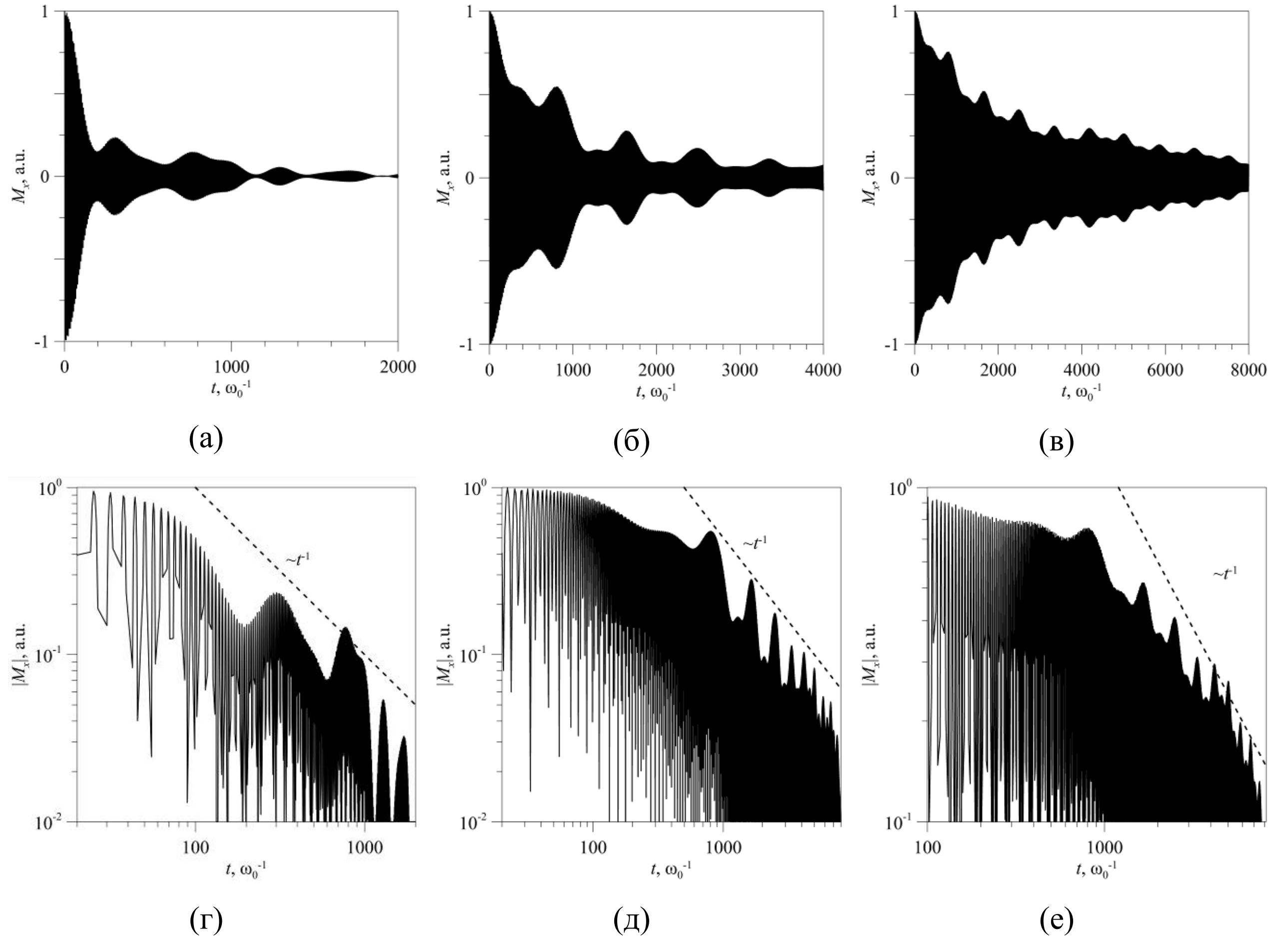


Рис. 4.15. Осреднённые спады свободной индукции для системы 8 частиц на дискретной сетке с расчётным объёмом 3^3 (левый столбец), 5^3 (в центре), 7^3 (правый столбец): а)–в) – сигналы в линейном масштабе; г)–е) – в логарифмических осях; пунктиром показана зависимость t^{-1}

Несмотря на разнообразие наблюдаемых зависимостей, совокупный сигнал намагниченности оказывается совпадающим для различных размерностей задачи при осреднении по более чем 20–30 сигналам (рис. 4.15, *а*–*в*). Наблюдается выраженный спад огибающей намагниченности по закону, который близок к обозначенному в (4.53) закону t^{-1} (рис. 4.15, *г*–*е*).

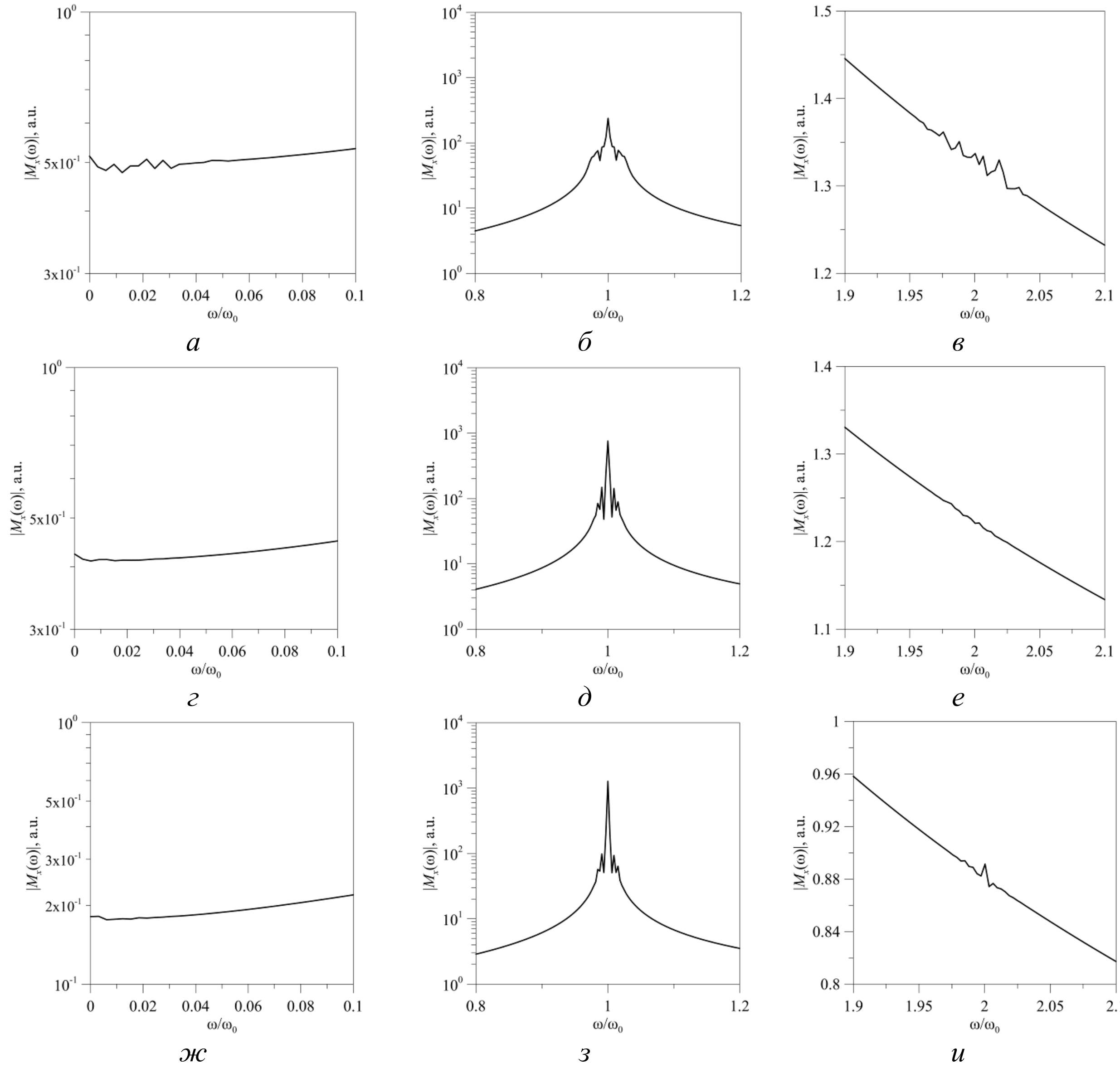


Рис. 4.16. Фурье-спектры осреднённых сигналов намагниченности для ансамбля кластеров из 8 частиц на дискретной сетке: (*а–в*) – 3^3; (*г–е*) – 5^3; (*ж–и*) – 7^3. Левый столбец отображает часть спектра вблизи нуля, средний – около ларморовской частоты ω_0, правый – около $2\omega_0$

Над общим фоновым сигналом при размере расчётной области 5^3 и 7^3 проявляются выраженные колебания намагниченности с частотой, относительно высокой по сравнению со временем релаксации. На рис. 4.16 показаны рассчитанные Фурье-спектры сигналов. На них хорошо видны слабые пики вблизи нулевой и удвоенной частоты, а также побочные колебания вокруг ларморовской, приводящие в целом к уширению главной спектральной линии. Ширина пиков в результате соответствует динамике наиболее тесных пар с расположением магнитных частиц на соседних узлах решётки. Вклад других кратных частот в пределах точности расчёта спектра не проявляется.

С другой стороны, хорошо выражено обострение главного пика в спектре на ларморовской частоте для систем большего объёма наряду с ослаблением колебаний вблизи нулевой и удвоенной частоты. Это отвечает увеличению среднего межчастичного расстояния в ансамбле, и соответствующему ослаблению релаксации намагниченности в целом.

4.2.8. Магнитная примесь в сплошной среде

В качестве альтернативной модели, описывающей эволюцию намагниченности в системе со случайным пространственным распределением частиц, рассмотрены спиновые кластеры, расположенные в объёме сплошной среды – то есть расстояние между отдельными частицами предполагается настолько большим, что дискретностью структуры решётки, в которую они внедрены, можно пренебречь. Это позволяет задавать произвольные случайные координаты, формируя таким образом «облако» частиц – кластер с заданным распределением расстояния от частиц до его центра. В данной формулировке параметр дипольного взаимодействия одновременно характеризует прежде всего характерное межчастичное расстояние, принимаемое за единицу длины. Выше такой же подход был применён при описании спиновых кластеров кольцевой и кубической структуры (см. п. 4.1, [265, 266]).

При проведении расчётов использовалось равномерное и нормальное распределения координат частиц со средним значением в нуле. Для равномерного распределения координаты лежат в пределах [–2, 2] по каждой из пространственных осей, и все частицы локализованы внутри куба размером 5×5×5. При использовании нормального распределения варьировалось стандартное отклонение координат относительно нуля, использованы значения 0.5, 0.8, 1.0, 1.2 и 1.5. Для всех вариантов было построено по 32 реализации, суммарный сигнал намагниченности системы вычислен как среднее арифметическое отдельных сигналов.

На рис. 4.17 показаны примеры спадов свободной индукции для отдельных реализаций при стандартных отклонениях 0.8, 1.0 и 1.5, а на рис. 4.18 – суммарные сигналы. Динамика отдельных реализаций качественно соответствует расположению магнитных частиц на дискретной решётке, однако суммарный сигнал является гладким, поскольку в сплошной среде минимальный характерный размер спиновой пары отсутствует, и могут реализоваться колебания с любой частотой. Физически обоснованный нижний предел отвечает постоянной решётки рассматриваемой среды.

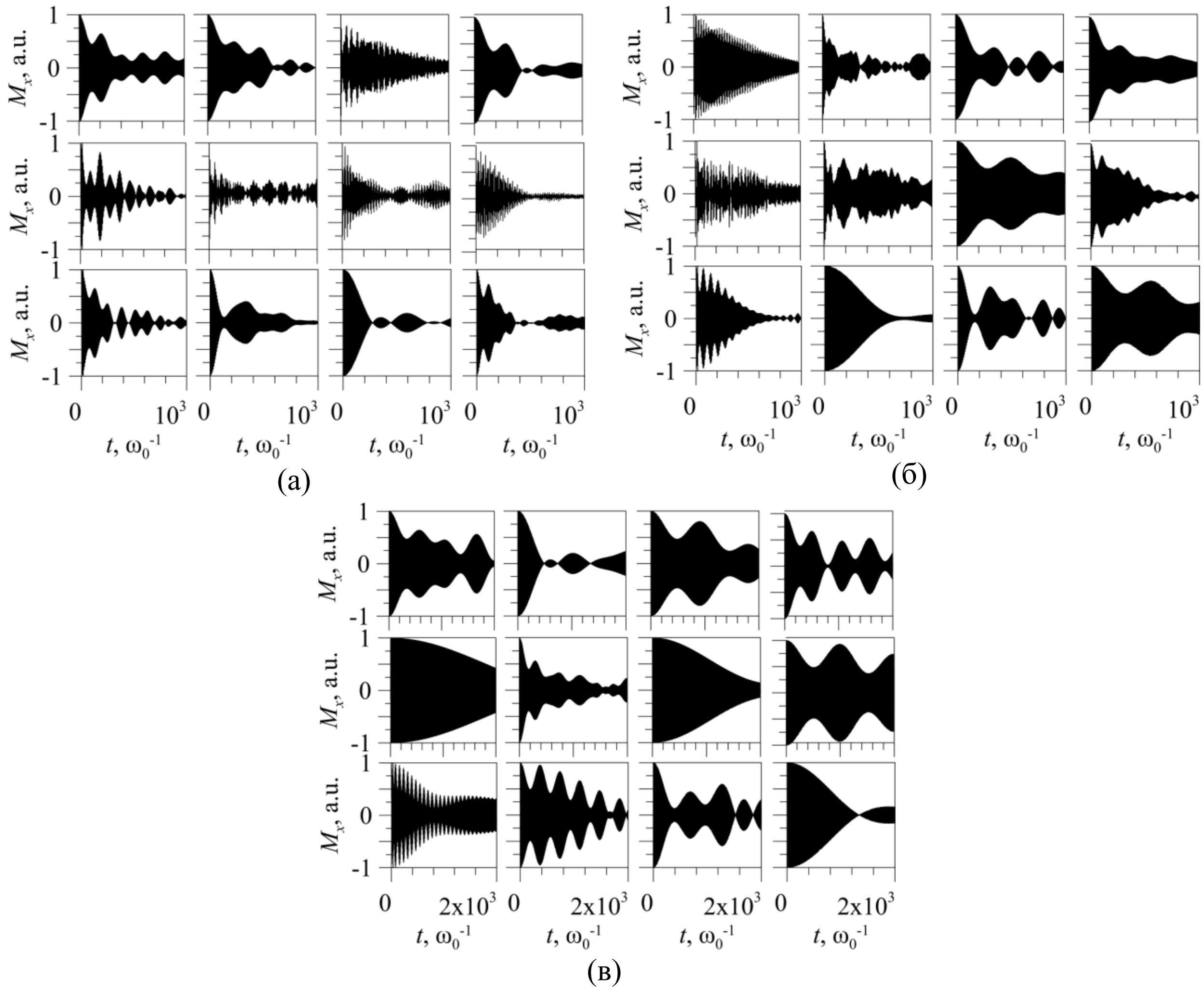


Рис. 4.17. Примеры реализаций сигналов спада намагниченности при случайном расположении магнитных частиц в сплошной среде при характерном размере кластера: а) – 0.8, б) – 1.0; в) – 1.5. Для всех расчётов основной параметр взаимодействия $\gamma = 0.01$, моделируется динамика кластера из 8 частиц

С другой стороны, асимптотическое поведение рассчитанной суммарной намагниченности в данном случае в меньшей мере отвечает оценке (4.53), что обусловлено генерацией случайных координат на основе распределения Гаусса. Соответственно этому, следует ожидать реализации аналогичного распределения для параметра p_d, тогда как представленная ранее оценка фактически отвечает равномерному распределению координат частиц и значения параметра взаимодействия в кластере.

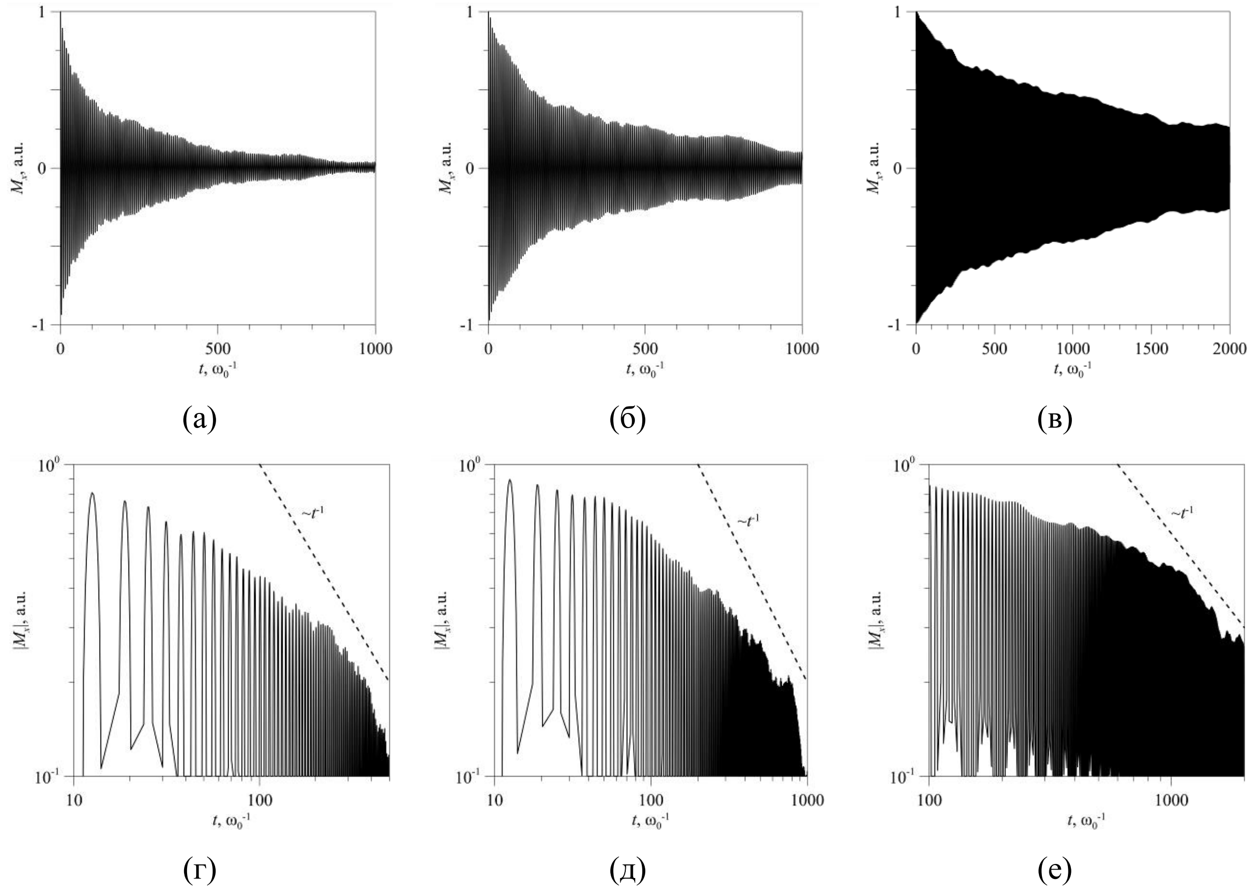


Рис. 4.18. Осреднённые спады свободной индукции для системы 8 частиц в сплошной среде при характерном размере кластера 0.8 (левый столбец), 1.0 (в центре) и 1.5 (правый столбец): а)–в) – сигналы в линейном масштабе; г)–е) – в логарифмических осях; пунктиром показана зависимость t^{-1}

4.3. Заключение

В данной главе описаны результаты моделирования динамики намагниченности низкоразмерных систем спинов, связанных дипольным и обменным взаимодействием и объединённых в компактные независимые кластеры различного размера. Для кольцевых, кубических и случайных конфигураций выполнены серии расчётов сигнала спада свободной индукции и его спектров. Для кольцевой структуры реализован аналитический расчёт второго и четвёртого моментов магниторезонансного спектра, найдены соответствующие пробные функции при различной ориентации относительно внешнего магнитного поля. Время магнитной релаксации дипольной системы, очевидно, пропорционально кубу характерного размера кластера. На основе полученных сигналов для отдельных компактных спиновых кластеров рассчитан отклик спиновой системы, включающей суммарно порядка 10^2–10^3 частиц и образованной кластерами с различными функциями распределения размеров. Найдены приближённые аналитические формулы для спада суммарной намагниченности с применением прямого осреднения пробных функций Абрагама.

Численное моделирование динамики намагниченности выполнено с применением квантово-механического подхода, основанного на построении полной матрицы оператора Гамильтона и его последующей диагонализации с воспроизведением полной волновой функции. Продемонстрирована возможность использования компромиссных расчётов на основе описания систем малой размерности, доступных для анализа на обычных рабочих станциях с ограниченным объёмом вычислительных ресурсов.

Полученные при численном моделировании результаты позволяют прогнозировать свойства различных ансамблей магнитных центров, в частности оценивать собственные резонансные частоты и времена релаксации, температуру перехода в парамагнитное состояние.

Глава 5. Коллективные моды намагниченности в низкотемпературных парамагнетиках

В настоящей главе изучаются коллективная динамика однокомпонентных низкотемпературных парамагнетиков, помещённых во внешнее постоянное поле, с учётом дипольного взаимодействия частиц. Реализовано описание равновесных и динамических свойств дипольно-связанного парамагнетика на базе подхода коллективных мод – спиновых волн. Для простой кубической решётки, ряда двумерных структур рассчитан энергетический спектр волн, вычислены продольные и поперечные компоненты магнитной восприимчивости. В рамках теории линейного отклика получены кривые спада свободной индукции и установления продольной намагниченности при скачке напряжённости продольного внешнего поля.

5.1. Гамильтониан дипольного парамагнетика

5.1.1. Спиновый гамильтониан

Глубоко проработанная теория спиновых волн (СВ) применяется прежде всего к макроскопическим кристаллам. Характерная энергия обменного взаимодействия в магнитоупорядоченных веществах – порядка 10^{-1}–1 эВ, и СВ в концентрированных ферро- и антиферромагнетиках устойчивы, реализуются при сравнительно высоких температурах. Изучаются также ядерные СВ – связанные колебания электронных и ядерных спинов в кристаллах типа MnCO3, CsMnF3 и др. Энергия дипольного взаимодействия в тонких плёнках соединений редкоземельных металлов ($GdCl_3$, EuO и др.) и других низкотемпературных парамагнетиках составляет 10^{-2}–10^{-1} мэВ, но в ряде случаев она превышает обменную, что исключает спонтанное упорядочение вплоть до температуры порядка единиц К и ниже. Тем не менее, благодаря дипольному взаимодействию реализуются коллективные отклонения магнитных моментов в кристалле от направления внешнего поля, соответствующего насыщению, что позволяет в итоге провести ряд относительно простых аналитических и численных расчётов свойств дипольной системы [113–116].

Гамильтониан парамагнитного кристалла, помещённый в сильное постоянное и однородное магнитное поле, вблизи состояния насыщения намагниченности соответствует (2.1)–(2.7). Несекулярная часть дипольного взаимодействия сохранена. Её вклад в спин-волновой гамильтониан как минимум при некоторых ориентациях поля может быть диагонализован преобразованием Боголюбова для операторов спиновых отклонений.

Формализм Холстейна–Примакова [156], изначально разработанный для описания свойств ферро- и антиферромагнетиков с большой интенсивностью обменного взаимодействия, позволяет анализировать коллективные явления и в дипольных системах [33, 113–116, 121, 124]. Преимуществом этого подхода является возможность явного вычисления дисперсионных соотношений коллективных мод с последующим расчётом макроскопических свойств магнетика без необходимости рассматривать решёточные уравнения для эволюции отдельных магнитных моментов [139–144]. Кроме того, спин-волновой формализм не требует включения в модель феноменологических параметров релаксации, которые свойственны моделям динамики макроскопической намагниченности, подобным уравнениям Блоха или Ландау–Лифшица–Гильберта [136–138, 331].

5.1.2. Спин-волновой гамильтониан

Опишем применение спин-волнового метода к дипольной системе более последовательно. В общем случае преобразование Холстейна–Примакова нелинейно. Циклические компоненты и z-компонента спина в терминах бозевских операторов (2.9) имеют следующий вид [156]:

$$n_j = \beta_j^\dagger \beta_j,\ S_j^z = S - \beta_j^\dagger \beta_j,\ S_j^+ = \sqrt{2S - \beta_j^\dagger \beta_j}\,\beta_j,\ S_j^- = \beta_j^\dagger \sqrt{2S - \beta_j^\dagger \beta_j}, \quad (5.1)$$

В пределе низких температур (или сильного внешнего поля) среднее число элементарных возбуждений малó, поэтому справедливо

$$\frac{\langle n_j \rangle}{2S} = \frac{\left\langle \beta_j^\dagger \beta_j \right\rangle}{2S} \ll 1. \quad (5.2)$$

Это позволяет разложить радикалы в операторах $S^{\pm}$ по степеням указанного отношения, и в линейном приближении для них получается:

$$S_j^+ \approx \sqrt{2S}\beta_j, \quad S_j^- \approx \sqrt{2S}\beta_j^\dagger. \quad (5.3)$$

Преобразование оператора S^z не требует модификации.

От операторов рождения и уничтожения спиновых отклонений на отдельных узлах удобно перейти к их Фурье-образам, соответствующим собственно спиновым волнам, распространяющимся по всей решётке:

$$\begin{gathered} \beta_j = \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{\mathbf{k}} \mathrm{e}^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}\beta_{\mathbf{k}}, \quad \beta_j^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{\mathbf{k}} \mathrm{e}^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}\beta_{\mathbf{k}}^\dagger, \\ \left[\beta_{\mathbf{k}}, \beta_{\mathbf{k}'}^\dagger\right]_- = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}, \quad \left[\beta_{\mathbf{k}}, \beta_{\mathbf{k}'}\right]_- = \left[\beta_{\mathbf{k}}^\dagger, \beta_{\mathbf{k}'}^\dagger\right]_- = 0, \end{gathered} \quad (5.4)$$

где N – полное число частиц в системе, $\mathbf{k}$ – волновой вектор коллективного спинового отклонения – спиновой волны, суммирование ведётся в пределах первой зоны Бриллюэна. Суперпозиция спиновых волн с различными длинами определяет наблюдаемое сложное распределение локальной намагниченности на узлах решётки.

Воспользуемся далее представлением Холстейна–Примакова (5.3) в компонентах гамильтониана спиновой системы (2.1)–(2.7). Зеемановское слагаемое преобразуется к виду

$$\hat{H}_Z = -\gamma H_0 \sum_{j=1}^{N} (S - \beta_j^\dagger \beta_j). \quad (5.5)$$

Дипольные компоненты гамильтониана:

$$\hat{H}_{dd}^S = \frac{\gamma^2}{2}\sum_{j\neq k} a_{jk}\left(S^2 - 2S\beta_j^\dagger\beta_j - \frac{S}{2}(\beta_j^\dagger\beta_k + \beta_j\beta_k^\dagger)\right) + O(\beta^4), \quad (5.6)$$

$$\hat{H}_{dd}^n = S\gamma^2 \sum_{j\neq k}\left(b_{jk}\beta_j\beta_k + h.c.\right) + \sqrt{2S}\gamma^2 \sum_{j\neq k}\left(c_{jk}\left(S\beta_j - \beta_j\beta_k^\dagger\beta_k\right) + h.c.\right) + O(\beta^4) \quad (5.7)$$

Здесь $O(\beta^4)$ обозначает слагаемые, содержащие 4 бозевских оператора и более. Вклад ведущего слагаемого $\beta^\dagger\beta^\dagger\beta\beta$ может быть учтён, в частности, с помощью преобразования Дайсона–Малеева [332, 333]. Слагаемые $\sim\beta$, $\sim\beta\beta\beta$ и др. с нечётным порядком исключаются выбором направления внешнего поля (например, вдоль оси *[100]*), тогда как в общем случае они приводят к изменению основного состояния, что требует дополнительного анализа [33].

5.2. Дисперсионное соотношение линейных спиновых волн

5.2.1. Билинейная часть гамильтониана

Линеаризованное преобразование Холстейна–Примакова позволяет представить гамильтониан в виде

$$\hat{H} = E_0 + \hat{H}^{(2)} + \hat{H}^{(4)} + \ldots \tag{5.8}$$

Постоянная E_0 определяет базовый уровень энергии полностью упорядоченной системы, но её значение несколько отличается от чисто зеемановской энергии – дипольное взаимодействие приводит к поправкам, которые определяются при нормализации произведений бозевских операторов. В дальнейшем она опущена.

Слагаемое $\hat{H}^{(2)}$ содержит члены, билинейные по β, и в общем случае при переходе к их Фурье-компонентам (5.4) имеет вид квадратичной формы [28, 33]

$$\hat{H}^{(2)} = \sum_{\mathbf{0},\mathbf{1}} (A_{\mathbf{01}} \beta_{\mathbf{0}}^{\dagger} \beta_{\mathbf{1}} + B_{\mathbf{01}} \beta_{\mathbf{0}} \beta_{\mathbf{1}} + C_{\mathbf{01}} \beta_{\mathbf{0}}^{\dagger} \beta_{\mathbf{1}}^{\dagger}), \tag{5.9}$$

где **0**, **1** и т.д. – числовые обозначения волновых векторов спиновых возбуждений. Коэффициенты $A_{\mathbf{01}}$, $B_{\mathbf{01}}$ и $C_{\mathbf{01}}$ описывают взаимодействие магнитных моментов с внешним полем и между собой с учётом геометрии решётки. Их общий вид даётся следующими выражениями:

$$\begin{aligned} A_{\mathbf{01}} = \omega_0 \delta_{\mathbf{01}} - \omega_d \Bigg[\frac{S}{N} \left(P_{\mathbf{01}}^{s} + \frac{1}{4} \left(Q_{\mathbf{01}}^{s} + Q_{\mathbf{01}}^{s*} \right) \right) - \frac{1}{2N^2} \sum_{\mathbf{2}} C_{\mathbf{0221}}^{s} - \\ - \frac{1}{2N^2} \sum_{\mathbf{2}} \left(K_{\mathbf{0122}}^{s} + K_{\mathbf{0212}}^{s} + L_{\mathbf{2201}}^{s} + L_{\mathbf{2021}}^{s} \right) \Bigg], \end{aligned} \tag{5.10}$$

$$B_{\mathbf{01}} = \omega_d \frac{S}{N} \left(P_{\mathbf{01}}^{ns} - \frac{1}{4N^2} \sum_{\mathbf{2}} M_{\mathbf{2201}}^{ns} \right), \quad C_{\mathbf{01}} = \omega_d \frac{S}{N} \left(P_{\mathbf{01}}^{ns*} - \frac{1}{4N^2} \sum_{\mathbf{2}} N_{\mathbf{2201}}^{ns} \right), \tag{5.11}$$

$$P^s_{\mathbf{01}}=\sum_{j\neq k} a_{jk}\mathrm{e}^{-i(\mathbf{0}-\mathbf{1})\cdot\mathbf{r}_j}, \quad Q^s_{\mathbf{01}}=\sum_{j\neq k} a_{jk}\mathrm{e}^{i(\mathbf{0}-\mathbf{1})\cdot\mathbf{r}_j}\mathrm{e}^{-i\mathbf{1}\cdot\mathbf{r}_{jk}},$$

$$C^s_{\mathbf{0123}}=\sum_{j\neq k} a_{jk}\mathrm{e}^{-i(\mathbf{0}-\mathbf{1}+\mathbf{2}-\mathbf{3})\cdot\mathbf{r}_j}\mathrm{e}^{-i(\mathbf{2}-\mathbf{3})\cdot\mathbf{r}_{jk}},$$

$$K^s_{\mathbf{0123}}=\sum_{j\neq k} a_{jk}\mathrm{e}^{-i(\mathbf{0}-\mathbf{1}-\mathbf{2}+\mathbf{3})\cdot\mathbf{r}_j}\mathrm{e}^{-i\mathbf{3}\cdot\mathbf{r}_{jk}}, \quad L^s_{\mathbf{0123}}=\sum_{j\neq k} a_{jk}\mathrm{e}^{i(\mathbf{0}-\mathbf{1}-\mathbf{2}+\mathbf{3})\cdot\mathbf{r}_j}\mathrm{e}^{-i\mathbf{0}\cdot\mathbf{r}_{jk}},$$

$$P^{ns}_{\mathbf{01}}=\sum_{j\neq k} b_{jk}\mathrm{e}^{i(\mathbf{0}+\mathbf{1})\cdot\mathbf{r}_j}\mathrm{e}^{i\mathbf{1}\cdot\mathbf{r}_{jk}}, \quad M^{ns}_{\mathbf{0123}}=\sum_{j\neq k} b_{jk}\mathrm{e}^{i(\mathbf{0}-\mathbf{1}+\mathbf{2}+\mathbf{3})\cdot\mathbf{r}_k}\mathrm{e}^{-i\mathbf{0}\cdot\mathbf{r}_{jk}},$$

$$N^{ns}_{\mathbf{0123}}=\sum_{j\neq k} b^*_{jk}\mathrm{e}^{i(\mathbf{0}+\mathbf{1}-\mathbf{2}+\mathbf{3})\cdot\mathbf{r}_j}\mathrm{e}^{-i\mathbf{3}\cdot\mathbf{r}_{jk}}.$$

где ω_0 – ларморовская частота, $\omega_d=\hbar\gamma^2/a_0^3$ – характерная дипольная частота, a_0 – постоянная решётки, N – число её узлов. В решётках с центром инверсии $C_{\mathbf{01}}=B_{\mathbf{01}}^*$. Коэффициенты $C_{\mathbf{0123}}$, $K_{\mathbf{0123}}$, $L_{\mathbf{0123}}$, $M_{\mathbf{0123}}$, $N_{\mathbf{0123}}$ появляются в билинейной части при нормализации членов $\hat{H}^{(4)}$. Верхний индекс *s* обозначает вклады, связанные с секулярной часть дипольного взаимодействия, а *ns* – с несекулярной.

Оператор (5.9) допускает диагонализацию преобразованием Боголюбова [33, 347], и при $C_{\mathbf{01}}=B_{\mathbf{01}}^*$ принимает вид:

$$\hat{H}^{(2)}=\sum_{\mathbf{k}}\omega_{\mathbf{k}}\tilde{\beta}^\dagger_{\mathbf{k}}\tilde{\beta}_{\mathbf{k}}, \qquad \omega_{\mathbf{k}}=\sqrt{A^2_{\mathbf{k}}-4\left|B_{\mathbf{k}}\right|^2}, \tag{5.12}$$

где $\tilde{\beta}^\dagger_{\mathbf{k}}$ и $\tilde{\beta}_{\mathbf{k}}$ – операторы нормальных колебаний, определяемые линейными комбинациями операторов $\beta_{\mathbf{k}}$. При отсутствии взаимодействий реализуется $A_{\mathbf{k}}=\omega_0$, $B_{\mathbf{k}}=0$, и система имеет только зеемановские уровни с высокой кратностью вырождения.

Неаналитичность Фурье-преобразования дипольного взаимодействия при $k=0$, обусловленная его дальнодействующим характером, учитывается введением размагничивающих факторов и доопределением дисперсионного соотношения значением в нуле. В частности, для кубических решёток $A_{\mathbf{k}\to0}$, $B_{\mathbf{k}\to0}=0$ [348]. Кроме того, для конечных решёток длина волны ограничена размером кристалла, и точка неаналитичности не достигается.

5.2.2. Трёхмерная кубическая решётка

При ориентировании поля вдоль кристаллографической оси *[100]* простой кубической решётки последовательное вычисление коэффициентов $A_{\mathbf{01}}$ и $B_{\mathbf{01}}$ с учётом вкладов первых ближайших соседей и размагничивающего поля после диагонализации даёт:

$$\begin{aligned} \hat{H}^{(2)} = \omega_0 \sum_{\mathbf{k}} \Bigg[\Bigg(& 1 - \left(S - \frac{1}{4} \right) p_d \left(\cos k_x + \cos k_y - 2\cos k_z \right) + \\ & + \frac{p_d}{N} \sum_{\mathbf{k}'} \left(\cos(k'_x - k_x) + \cos(k'_y - k_y) - 2\cos(k'_z - k_z) \right) + \\ & + \frac{1}{4} \frac{p_d}{N} \sum_{\mathbf{k}'} \left(\cos k'_x + \cos k'_y - 2\cos k'_z \right) + \frac{1}{2} \left(\frac{k'^2_z}{k^2} - \frac{1}{3} \right) \Bigg) \beta^\dagger_{\mathbf{k}} \beta_{\mathbf{k}} - \\ - \frac{3}{4} \Bigg(& 2 p_d S \left(\cos k_x - \cos k_y \right) + \frac{p_d}{2N} \sum_{\mathbf{k}'} \left(\cos k'_x - \cos k'_y \right) \Bigg) \left(\beta_{\mathbf{k}} \beta_{-\mathbf{k}} + \beta^\dagger_{\mathbf{k}} \beta^\dagger_{-\mathbf{k}} \right) \Bigg], \end{aligned} \tag{5.13}$$

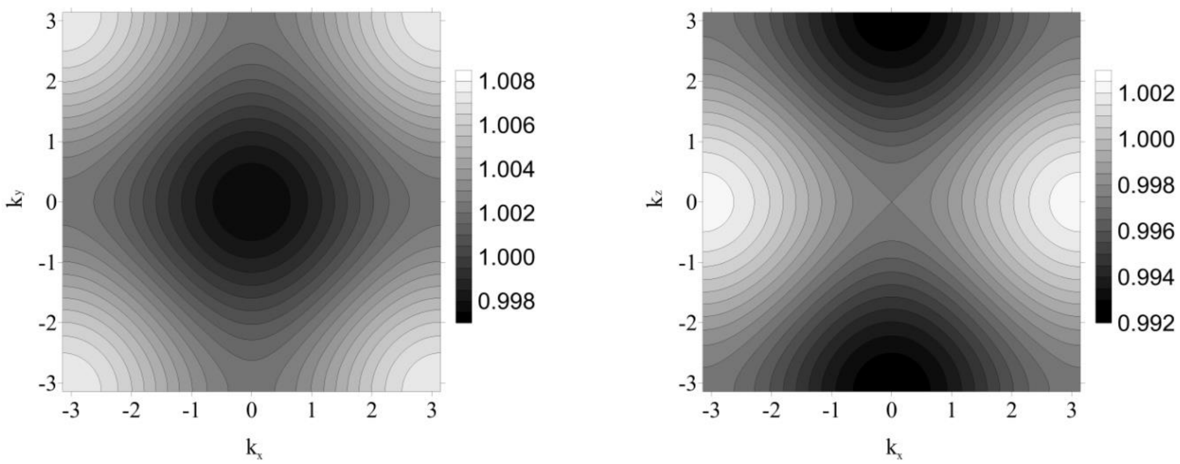
где $p_d = \omega_d / \omega_0$ – безразмерный параметр интенсивности взаимодействия, компоненты волновых векторов даны в единицах a_0^{-1}. Суммы по $\mathbf{k}'$ связаны с взаимодействием спиновых волн, поскольку они возникают в ходе нормализации четырёхволновых операторов. Их вклад в энергетический спектр пренебрежимо мал.

Дисперсионное соотношение, нормировано на ларморовскую частоту, для невзаимодействующих дипольных спиновых волн в простой кубической решётке выглядит следующим образом:

$$\begin{aligned} \omega^2_{\mathbf{k}} = & \left(1 - \left(S - \frac{1}{4} \right) p_d \left(\cos k_x + \cos k_y - 2\cos k_z \right) + \frac{1}{2} \left(\frac{k_z^{\ 2}}{k^2} - \frac{1}{3} \right) \right)^2 - \\ & - \frac{9}{4} \left(p_d S \right)^2 \left(\cos k_x - \cos k_y \right)^2. \end{aligned} \tag{5.14}$$

Вклад, обусловленный размагничивающим полем, не зависит от модуля k, и определяет только анизотропию дисперсионного соотношения [114, 115].

На рис. 5.1 показаны рассчитанные согласно (5.14) изолинии энергии спиновых волн на плоскости $z = 0$ и $y = 0$. Чёрный цвет обозначает максимумы, а белый – минимумы энергии.



а) б)

Рис. 5.1. Энергия дипольных спиновых волн в простой кубической решётке, сечение плоскостью: а) – xy ($k_z = 0$); б) – xz ($k_y = 0$); параметр интенсивности дипольного взаимодействия $p_d = 0.01$

Рассчитанная структура дисперсионного соотношения полностью соответствует свойствам симметрии кристаллической решётки. В пределе длинных волн, распространяющихся ортогонально направлению внешнего поля, дисперсионное соотношение имеет изотропную структуру. Минимум энергии соответствует модам с $\mathbf{k} = 0$, а вблизи него реализуется параболический закон дисперсии. При распространении волн в плоскости, ориентированной вдоль поля, этого не происходит – минимуму энергии отвечает, напротив, малый пространственный период в направлении оси z. Эта точка, помимо прочего, является также и глобальным минимумом дисперсионного соотношения в пределах первой зоны Бриллюэна. Таким образом, реализуется разделение на «слои» с различной скоростью прецессии магнитных моментов, обусловленное анизотропией дипольного взаимодействия.

Ширина энергетического интервала, который занимают спиновые волны составляет величину порядка p_d. Все значения энергии локализованы вблизи зеемановского уровня. Потому в адиабатическом приближении становится невозможным слияние двух, трёх или большего числа волн, равно как и расщепление одной волны на несколько. Наиболее существенный вклад в свойства системы вносит, таким образом, только упругое рассеяние волн [30]. Это определяют доминирование механизма спин-решёточной релаксации спиновых волн – при движении спиновая волна вызывает рождение одного или нескольких фононов, и в итоге энергия прецессии магнитных моментов преобразуется в акустические и тепловые колебания решётки [119–121].

В случае, когда внешнее поле ориентировано вдоль оси *[011]*, вклады в (5.12), обусловленные ближним радиусом взаимодействия, принимают следующий вид:

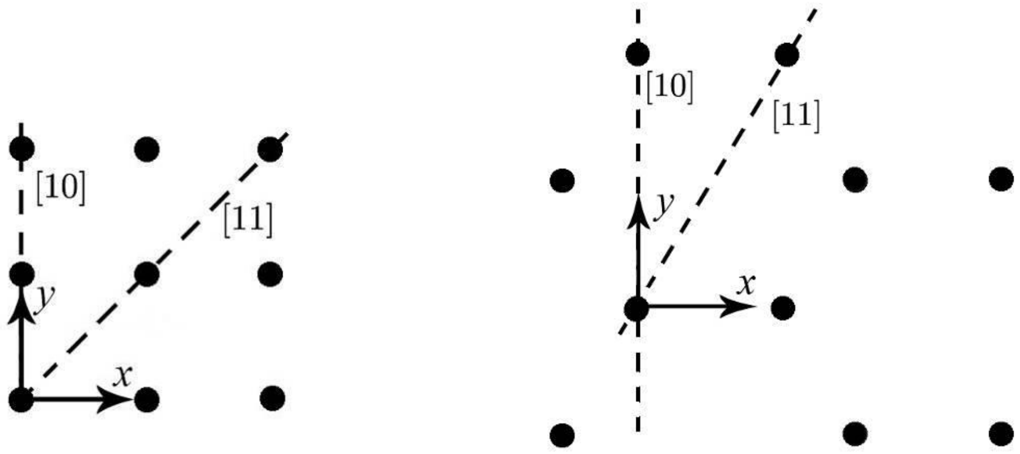
$$\begin{aligned} A_{\mathbf{k}} &= 1 + Sp_d\left(\cos k_y a - \cos\frac{k_x a}{\sqrt{2}}\cos\frac{k_z a}{\sqrt{2}}\right), \\ B_{\mathbf{k}} &= \frac{3Sp_d}{2}\left(\cos k_y a - \cos\frac{k_x a}{\sqrt{2}}\cos\frac{k_z a}{\sqrt{2}}\right). \end{aligned} \tag{5.15}$$

Если поле направлено вдоль главной диагонали ячейки (ось *[111]*), секулярная часть дипольного взаимодействия зануляется:

$$\begin{aligned} A_{\mathbf{k}} &= 1 - 6Sp_d, \\ B_{\mathbf{k}} &= -Sp_d\left[\left(\cos\frac{\sqrt{2}k_x a}{\sqrt{3}} - \left(\cos\frac{k_x a}{\sqrt{6}} - \sqrt{3}\sin\frac{k_x a}{\sqrt{6}}\right)\cos\frac{k_y a}{\sqrt{2}}\right)\cos\frac{k_z a}{\sqrt{3}} - \right. \\ &\left. -\left(\sin\frac{\sqrt{2}k_x a}{\sqrt{3}} - \sin\frac{k_x a}{\sqrt{6}}\sin\frac{k_y a}{\sqrt{2}} + \sqrt{3}\cos\frac{k_x a}{\sqrt{6}}\cos\frac{k_y a}{\sqrt{2}}\right)\sin\frac{k_z a}{\sqrt{3}}\right]. \end{aligned} \tag{5.16}$$

5.2.3. Двумерные решётки

Выполнены также расчёты для двумерных кристаллических решёток – квадратной и гексагональной – в случае внешнего поля, ориентированного перпендикулярно или параллельно плоскости решётки (рис. 5.2). В этом случае дипольное взаимодействие можно считать короткодействующим.



а) б)

Рис. 5.2. Геометрия рассмотренных двумерных решёток, системы координат на плоскости: а) – квадратная решётка; б) – гексагональная решётка

В случае перпендикулярного поля вычисление коэффициентов $A_{\mathbf{k}}$ и $B_{\mathbf{k}}$ с точностью до ближайших соседей первого порядка даёт:

$$\hat{H}^{(2)}=\sum_{\boldsymbol{k}}\left[\left(1-SZp_d\left(1+\frac{1}{2}\operatorname{Re}\gamma_{\boldsymbol{k}}\right)\right)\beta_{\boldsymbol{k}}^{\dagger}\beta_{\boldsymbol{k}}-\frac{3}{4}SZp_d\left(\gamma_{\boldsymbol{k}}^{-2\varphi}\beta_{\boldsymbol{k}}\beta_{-\boldsymbol{k}}+\gamma_{-\boldsymbol{k}}^{2\varphi}\beta_{\boldsymbol{k}}^{\dagger}\beta_{-\boldsymbol{k}}^{\dagger}\right)\right]. \quad (5.17)$$

где Z – координационное число ($Z = 4$ для квадратной решётки, и $Z = 3$ для гексагональной). Здесь для краткости обозначений введены коэффициенты, описывающие геометрию решётки [28, 33]:

$$\gamma_{\boldsymbol{k}}=\frac{1}{Z}\sum_{\delta}\mathrm{e}^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{\delta}},\quad \gamma_{\boldsymbol{k}}^{n\varphi}=\frac{1}{Z}\sum_{\delta}\mathrm{e}^{in\varphi_{\delta}\delta}\mathrm{e}^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{\delta}},\quad \gamma_{-\boldsymbol{k}}^{-n\varphi}=\left(\gamma_{\boldsymbol{k}}^{n\varphi}\right)^{*}, \quad (5.18)$$

суммирование ведётся по ближайшим соседям, положения которых определяются векторами $\boldsymbol{\delta}$. В целом вычисление коэффициентов (5.18) является полностью геометрической задачей и не привязано к физическим особенностям конкретных систем. Учёт следующих координационных сфер позволяет уточнить значение энергии спиновых волн, однако качественно её зависимость от волнового вектора при этом не изменяется.

Дисперсионное соотношение (5.12) для случая перпендикулярного поля записывается следующим образом:

$$\omega_{\boldsymbol{k}}^{2}=\left[1-SZp_d\left(1+\frac{1}{2}\operatorname{Re}\gamma_{\boldsymbol{k}}\right)\right]^{2}-\frac{9}{4}(SZp_d)^{2}\left|\gamma_{\boldsymbol{k}}^{-2\varphi}\right|^{2}. \quad (5.19)$$

В квадратной решётке ввиду её симметрии параметры $\gamma_{\mathbf{k}}$ полностью вещественны и равны

$$\gamma_{\boldsymbol{k}} = \frac{1}{2}\left(\cos k_x a_0 + \cos k_y a_0\right), \quad \gamma_{\boldsymbol{k}}^{-2\varphi} = \frac{1}{2}\left(\cos k_x a_0 - \cos k_y a_0\right). \tag{5.20}$$

Они соответствуют в том числе и результату, который получается для кубической решётки (см. (5.14)).

В гексагональной решётке $\gamma_{\mathbf{k}}$ становятся комплексными:

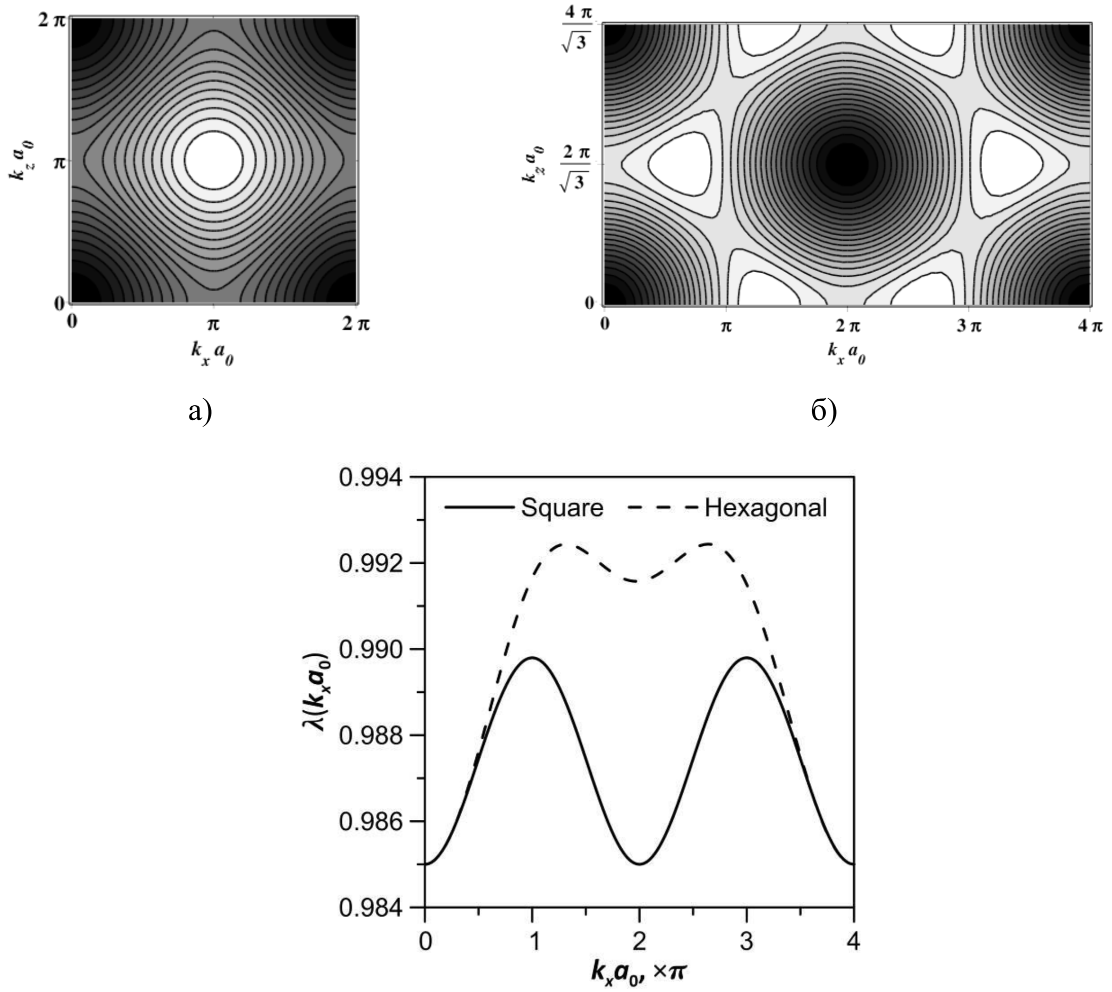
$$\begin{gathered} \gamma_{\boldsymbol{k}} = \frac{1}{3}\left[\left(\cos k_x a_0 + A\cos\frac{k_x a_0}{2}\right) + i\left(\sin k_x a_0 - A\sin\frac{k_x a_0}{2}\right)\right], \\ \gamma_{\boldsymbol{k}}^{-2\varphi} = \frac{1}{3}\left[\left(\cos k_x a_0 - B\cos\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a_0\right) + i\left(\sin k_x a_0 - B\sin\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a_0\right)\right], \end{gathered} \tag{5.21}$$

где

$$A = 2\cos\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a_0, \qquad B = \left(\cos\frac{k_x a_0}{2} - \sqrt{3}\sin\frac{k_x a_0}{2}\right).$$

Рисунок 5.3, *а*, *б* показывает рассчитанную поверхность энергии дипольных спиновых волн в перпендикулярном магнитном поле для квадратной и гексагональной решётки. На рис. 5.3, *в* представлено дисперсионное соотношение для спиновых волн, распространяющихся вдоль оси *x*, на обеих рассмотренных решётках [157].

Видно, что если поле ортогонально плоскости решётки, то минимальной энергией обладают длинноволновые коллективные возбуждения. Это согласуется с результатом для трёхмерной решётки (см. рис. 5.1, *а*). Таким образом, при слабых возмущениях реализуются длинноволновые возбуждения. Дисперсионное соотношение в пределе длинных волн становится изотропным, а их энергия зависит от волнового числа по квадратичному закону, как это реализуется и для спиновых волн в ферромагнетиках [28, 30–34].



а) б)

в)

Рис. 5.3. Рассчитанная энергия спиновых волн на двумерной решётке в постоянном магнитном поле, перпендикулярном её плоскости: а) – изолинии на квадратной решётке; б) – изолинии на гексагональной решётке; в) – энергия волн, распространяющихся вдоль оси x при $k_y = 0$ на квадратной (сплошная линия) и гексагональной (штриховая линия) решётке

Рассмотрим теперь ситуацию, когда внешнее поле (и, соответственно, ось z) лежат в плоскости материала. В состоянии насыщения намагниченность решётки также будет лежать в её плоскости. Теперь полярные углы θ_{jk}, фигурирующие в структуре гамильтониана, различны для разных узлов решётки даже в приближении первой координационной сферы. С другой стороны, полагая, что ось x лежит в плоскости кристаллической решётки, всегда можно положить $\varphi_{jk} = 0$. Для обеих структур решётки рассмотрены случаи, когда поле ориентировано вдоль кристаллографических направлений *[10]* и *[11]* (показаны штриховыми линиями на рис. 5.2).

При ориентировании внешнего магнитного поля по кристаллографической оси *[10]* получаются следующие дисперсионные соотношения:

– для квадратной решётки:

$$\omega_{\boldsymbol{k}}^2 = \left(1 + Sp_d(2 - \cos k_x a_0 + 2\cos k_z a_0)\right)^2 - 9(Sp_d)^2 \cos^2 k_x a_0, \tag{5.22}$$

– для гексагональной решётки:

$$\omega_{\boldsymbol{k}}^2 = \left[1 + Sp_d\left(3 - \cos k_x a_0 + \frac{5}{2}\cos\frac{k_x a_0}{2}\cos\frac{\sqrt{3}}{2}k_z a_0\right)\right]^2 - \frac{9}{4}(Sp_d)^2 \times$$
$$\times\left[\left(\cos k_x a_0 + \frac{1}{2}\cos\frac{k_x a_0}{2}\cos\frac{\sqrt{3}}{2}k_z a_0\right)^2 + \right. \tag{5.23}$$
$$\left. + \left(\sin k_x a_0 - \frac{1}{2}\sin\frac{k_x a_0}{2}\cos\frac{\sqrt{3}}{2}k_z a_0\right)^2\right].$$

Когда поле направлено вдоль оси *[11]*, дисперсионные соотношение видоизменяются:

– для квадратной решётки:

$$\omega_{\boldsymbol{k}}^2 = \left(1 + Sp_d\left(2 + \cos\frac{k_x a_0}{\sqrt{2}}\cos\frac{k_z a_0}{\sqrt{2}}\right)\right)^2 - 9(Sp_d)^2\cos^2\frac{k_x a_0}{\sqrt{2}}\cos^2\frac{k_z a_0}{\sqrt{2}}. \tag{5.24}$$

– для гексагональной решётки:

$$\omega_{\boldsymbol{k}}^2 = \left[1 + \frac{1}{2}Sp_d\left(3 + 2\cos k_z a_0 - \cos\frac{k_z a_0}{2}\cos\frac{\sqrt{3}}{2}k_x a_0\right)\right]^2 -$$
$$- \frac{81}{16}(Sp_d)^2\cos^2\frac{\sqrt{3}}{2}k_x a_0. \tag{5.25}$$

Соответствующие изолинии энергии для квадратной и гексагональной решётки представлены на рис. 5.4.

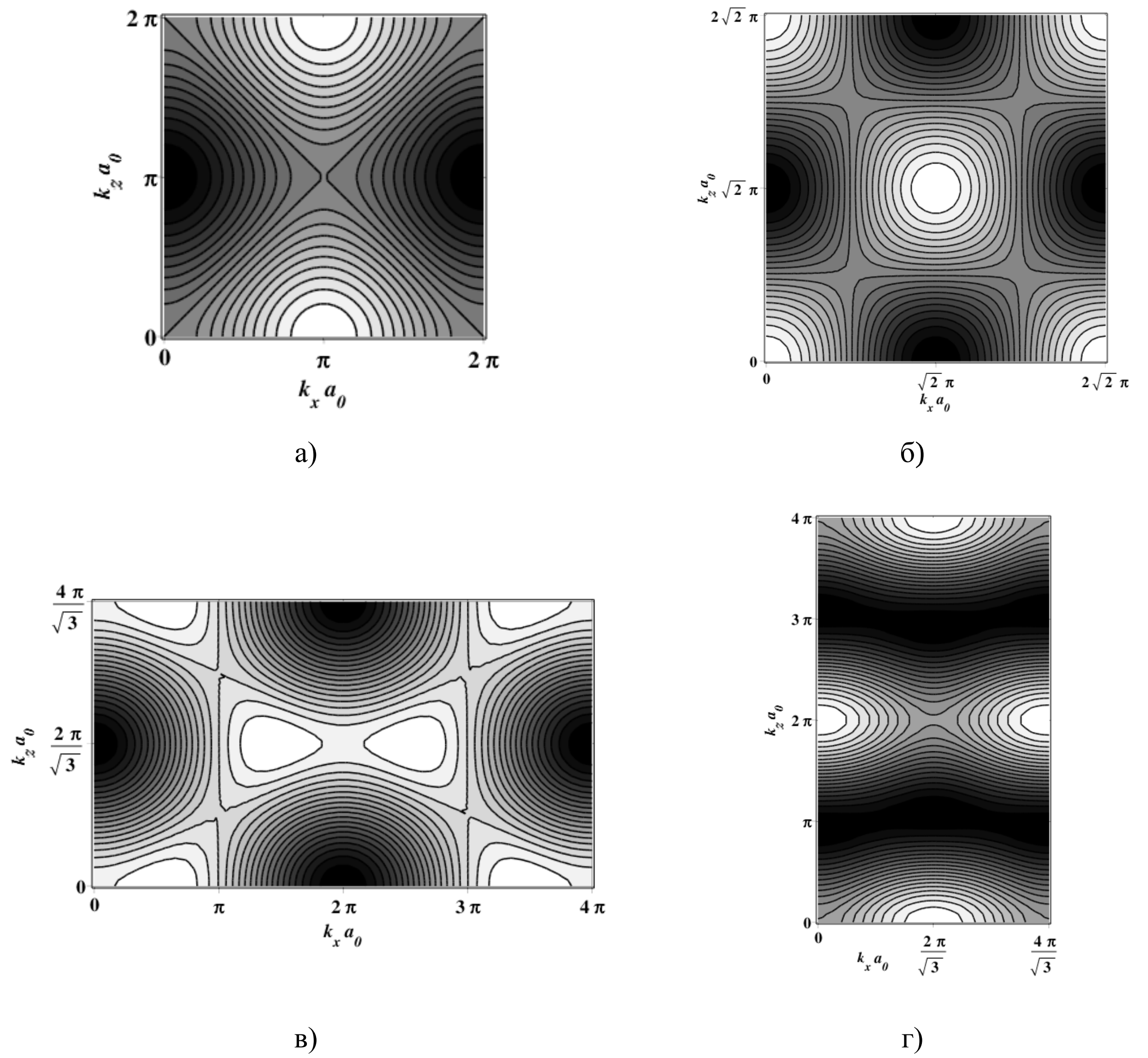


Рис. 5.4. Изолинии энергии дипольных спиновых волн на двумерных решётках при ориентации внешнего поля в её плоскости: а) квадратная, поле вдоль *[10]*; б), квадратная, *[11]*; в) гексагональная, *[10]*; г) гексагональная, *[11]*

Характерной особенностью системы в случае параллельного поля становится тот факт, что энергия волн является минимальной не в длинноволновом пределе – с наибольшей вероятностью в системе должны преобладать возбуждения с конечной длиной волны, соизмеримой с постоянной решётки. Этот результат согласуется с данными для трёхмерной системы (см. рис. 5.1, *б*), подтверждая высокую значимость анизотропии дипольного взаимодействия в формировании спиновых волн в системе.

5.2.4. Кольцевой спиновый кластер

Примером системы, где спин-волновое приближение позволяет получить точное решение, является кольцевой спиновый кластер, образованный N частицами, расположенными по окружности с равным шагом (рис. 5.5). Такая возможность обусловлена тем, что структура кластера при достаточно большом радиусе кольца позволяет учитывать только ближайшие взаимодействия между магнитными центрами.

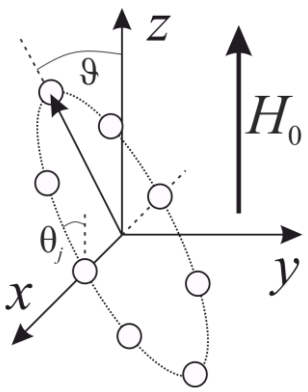


Рис. 5.5. Структура кольцевого спинового кластера, ориентированного под углом ϑ относительно внешнего постоянного поля

В самом деле, относительная энергия дипольного взаимодействия между частицами убывает с расстоянием по кубическому закону, и, если длина связи составляет $a_0 = 2\pi R/N$, где R – радиус кольца, то наиболее удалённая от данной частица вносит вклад в энергию $W_{RR} \sim \mu^2/8R^3$, тогда как в наиболее тесных парах энергия составляет $W_{aa} \sim N^3\mu^2/8\pi^3R^3$, убывая по мере удаления как $1/R^3(\pi j/N)$.

Безразмерный гамильтониан такой структуры с учётом только секулярной части имеет вид

$$\frac{\hat{H}}{\hbar\omega_0} = -\sum_j S_j^z + p_d \sum_j \left(1 - 3\cos^2\theta_{j,j+1}\right)\left(S_j^z S_{j+1}^z - \frac{1}{4}\left(S_j^+ S_{j+1}^- + S_j^- S_{j+1}^+\right)\right). \quad (5.26)$$

Преобразование (5.3) приводит гамильтониан к билинейному виду

$$\frac{\hat{H}}{\hbar\omega_0} = E_0 + \sum_j \beta_j^\dagger \beta_j - \sum_j f(\theta_j)\left(\beta_j^\dagger \beta_{j+1} + \beta_{j+1}^\dagger \beta_j\right),$$
$$f(\theta_j) = \left(1 + \frac{S}{2}\right) p_d \left(1 - 3\cos^2\theta_j\right), \quad (5.27)$$

где E_0 – постоянная, не влияющая на эволюцию наблюдаемых. Фурье-преобразование по угловой координате в плоскости кольца (или по номеру частицы)

$$\beta_j = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_n \beta_n \exp\left(-\frac{2\pi i}{N} nj \right), \qquad \beta_j^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_n \beta_n^\dagger \exp\left(\frac{2\pi i}{N} nj \right)$$

позволяет переписать слагаемые в (5.27) следующим образом:

$$\sum_j \alpha_j^\dagger \alpha_j = \sum_{j,n,m} \frac{\alpha_n^\dagger \alpha_m}{N} \exp\left(\frac{2\pi i}{N} (n-m)\, j \right) = \sum_n \alpha_n^\dagger \alpha_n,$$

$$\sum_j f(\theta_j)\left(\alpha_j^\dagger \alpha_{j+1} + \alpha_{j+1}^\dagger \alpha_j \right) = 2 \sum_{n,m} f_{n,m} \cos\left(\frac{2\pi m}{N} \right) \alpha_n^\dagger \alpha_m, \tag{5.28}$$

$$f_{n,m} = \left(1 + \frac{S}{2} \right) p_d \left[\left(1 - \frac{3}{2} \cos^2 \vartheta \right) \delta_{nm} - \frac{3}{2} \cos^2 \vartheta \left(\delta_{n,m-2} + \delta_{n,m+2} \right) \right].$$

Последнее выражение получено следующим образом. По определению, Фурье-образ функции $f(\theta_j)$

$$f_{n,m} = \left(1 + \frac{S}{2} \right) \frac{p_d}{N} \sum_j \left(1 - 3\cos^2 \theta_j \right) \exp\left(\frac{2\pi i}{N} (n-m)\, j \right). \tag{5.29}$$

В рассматриваемой постановке θ_j – это угол между внешним полем $\vec{H}_0 = \{0, 0, H_0\}$ и касательным вектором к окружности в точке, где находится частица с номером j. Он равен $\vec{\tau}_j = \{x'_j, y'_j, z'_j\}$, где x', y', z' – производные параметрического представления окружности, и поэтому

$$\cos\theta_j = \frac{\vec{H}_0 \cdot \vec{\tau}_j}{\left| \vec{H}_0 \right| \cdot \left| \vec{\tau}_j \right|} = \frac{z'_j}{\sqrt{x'^2_j + y'^2_j + z'^2_j}}.$$

В частном случае $\vartheta = \pi/2$ кольцо лежит в плоскости, ортогональной полю, и описывающие его параметрические уравнения примут вид $x = R\cos\varphi,\ y = R\sin\varphi,\ z = 0$, где φ изменяется от 0 до 2π. Поворот кольца вокруг оси x на $\beta = \pi/2 - \vartheta$ преобразует координаты его точек к виду $x = R\cos\varphi,\ y = R\sin\vartheta\sin\varphi,\ z = R\cos\vartheta\sin\varphi.$ Соответственно, $\cos\theta_j$ определяется следующим образом:

$$x'_j = -R\sin\varphi_j,\ \ y'_j = R\sin\vartheta\cos\varphi_j,\ \ z'_j = R\cos\vartheta\cos\varphi_j,\ \ \left|\vec{\tau}_j\right| = R^2,$$

$$\cos\theta_j = \cos\vartheta\cos\varphi_j = \cos\vartheta\cos\frac{2\pi j}{N}.$$

Первое слагаемое Фурье-образа $f_{n,m}$. не зависит от угла θ_j и пропорционально дельта-символу:

$$f^{(1)}_{n,m} = \left(1+\frac{S}{2}\right)\frac{p_d}{N}\sum_j \exp\left(\frac{2\pi i}{N}(n-m)\,j\right) = \left(1+\frac{S}{2}\right)p_d\delta_{n,m}. \qquad (5.30)$$

При $\vartheta = \pi/2$ другие вклады в $f_{n,m}$ отсутствуют.

Второй член Фурье-образа равен

$$f^{(2)}_{n,m} = -3\left(1+\frac{S}{2}\right)\frac{p_d}{N}\sum_j \cos^2\theta_j \exp\left(\frac{2\pi i}{N}(n-m)\,j\right) =$$

$$= -3\left(1+\frac{S}{2}\right)\frac{p_d}{N}\cos^2\vartheta\sum_j \cos^2\frac{2\pi j}{N}\exp\left(\frac{2\pi i}{N}(n-m)\,j\right) = \qquad (5.31)$$

$$= -\frac{3}{2}\left(1+\frac{S}{2}\right)\frac{p_d}{N}\cos^2\vartheta\sum_j\left(1+\cos\frac{4\pi j}{N}\right)\exp\left(\frac{2\pi i}{N}(n-m)\,j\right).$$

Первое слагаемое здесь также определяется дельта-символом, тогда как второе не является диагональным. Оно равно

$$\sum_j \exp\left(\frac{2\pi i}{N}(n-m)\,j\right)\cos\frac{4\pi j}{N} =$$

$$= \frac{1}{2}\sum_j \exp\left(\frac{2\pi i}{N}(n-m)\,j\right)\left(\exp\left(i\frac{4\pi j}{N}\right)+\exp\left(-i\frac{4\pi j}{N}\right)\right) =$$

$$= \frac{1}{2}\sum_j\left[\exp\left(\frac{2\pi i}{N}(n-m+2)\,j\right)+\exp\left(\frac{2\pi i}{N}(n-m-2)\,j\right)\right] = \frac{N}{2}\left(\delta_{n,m-2}+\delta_{n,m+2}\right).$$

Итоговый вид спин-волнового гамильтониана кольцевой структуры:

$$\frac{\hat{H}}{\hbar\omega_0} = \sum_n\left(A_n\beta^\dagger_n\beta_n - \frac{B_n}{2}\left(\beta^\dagger_{n+2}\beta_n + \beta^\dagger_n\beta_{n+2}\right)\right),$$

$$A_n = 1-2\left(1+\frac{S}{2}\right)p_d\left(1-\frac{3}{2}\cos^2\vartheta\right)\cos\frac{2\pi n}{N}, \qquad (5.32)$$

$$B_n = 3\left(1+\frac{S}{2}\right)p_d\cos^2\vartheta\cos\frac{2\pi(n+2)}{N}.$$

Его собственные частоты равны в общем случае $\omega_n = \left(A_n \pm \sqrt{A_n^2 + B_n^2} \right) / 2$. С учётом малости p_d, ветви спектра с точностью до линейных вкладов по интенсивности взаимодействия

$$\omega_{1,n} = 1 - p_d (S+2)(1 - 3\cos^2 \vartheta) \cos \frac{2\pi n}{N} + O(p_d^2), \quad \omega_{2,n} = O(p_d^2). \qquad (5.33)$$

Основные особенности полученного спектра не отличаются от таковых для двумерных и трёхмерных систем, он локализован вблизи ларморовской частоты и занимает полосу порядка p_d. Несмотря на учёт только секулярной части взаимодействия, реализуется ветвь спектра с частотами вблизи нуля.

5.2.5. Одномерная цепочка частиц

Особенностью одномерной цепочки магнитных частиц является возможность точного учёта всех радиусов взаимодействия. Рассмотрим одномерную спиновую систему с постоянным периодом d, ориентированную под углом ϑ к внешнему полю (рис. 5.6). Этот угол в линейной цепи является одинаковым для всех возможных пар частиц, что существенно упрощает рассмотрение.

Система описывается гамильтонианом:

$$\frac{\hat{H}}{\hbar\omega_0} = -\sum_j S_j^z + p_d f(\vartheta) \sum_{j \neq k} \frac{1}{n_{jk}^3} \left[S_j^z S_k^z - \frac{1}{4}\left(S_j^+ S_k^- + S_j^- S_k^+ \right) \right] +$$

$$+ p_d g(\vartheta) \sum_{j \neq k} \frac{1}{n_{jk}^3} \left[S_j^+ S_k^z + S_j^z S_k^+ + h.c. \right] + p_d h(\vartheta) \sum_{j \neq k} \frac{1}{n_{jk}^3} \left[S_j^+ S_k^+ + h.c. \right], \qquad (5.34)$$

$$f(\vartheta) = 1 - 3\cos^2 \vartheta, \quad g(\vartheta) = -\frac{3}{4} \sin \vartheta \cos \vartheta, \quad h(\vartheta) = -\frac{3}{2} \sin^2 \vartheta.$$

Несекулярными вкладами при рассмотрении дисперсионного соотношения пренебрегается. В первом порядке малости [163] их влияние приводит только к генерации слабых колебаний намагниченности с частотами вблизи нуля и удвоенной ларморовской, а в старших порядках они определяют, прежде всего, возникновение кратных гармоник.

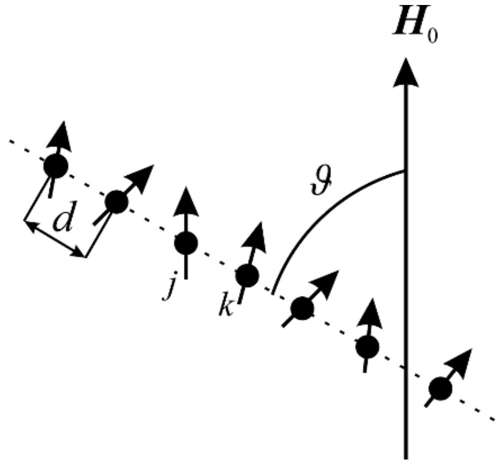


Рис. 5.6. Структура одномерной спиновой цепочки во внешнем поле

Уравнение эволюции поперечной компоненты спинового момента на узле с номером p получается непосредственно из гамильтониана (5.34):

$$i\frac{dS_p^+}{dt} = -S_p^+ + 2p_d f(\vartheta)\left[\left(\sum_{j\neq p}\frac{S_j^z}{n_{jp}^3}\right)S_p^+ + \frac{1}{2}\left(\sum_{j\neq p}\frac{S_j^+}{n_{jp}^3}\right)S_p^z\right]. \tag{5.35}$$

Первая сумма в его правой части может быть переопределена как эффективное среднее поле:

$$h_{eff}^z = \sum_{j\neq p}\frac{S_j^z}{n_{jp}^3} \sim \left\langle S^z\right\rangle \sum_{j\neq p}\frac{1}{n_{jp}^3}, \qquad h_{eff}^z\Big|_{N\to\infty} = \langle S^z\rangle \zeta(3), \tag{5.36}$$

Где $\zeta(3)\approx 1.2021$ – сумма обратных кубов (постоянная Апери) [349]. Слагаемые во второй сумме могут быть перегруппированы

$$\sum_{j\neq p}\frac{S_j^+}{n_{jp}^3} = S_{p+1}^+ + S_{p-1}^+ + \frac{1}{2^3}\left(S_{p+2}^+ + S_{p-2}^+\right) + \frac{1}{3^3}\left(S_{p+3}^+ + S_{p-3}^+\right) + \ldots, \tag{5.37}$$

и уравнение (5.35) перепишется следующим образом:

$$i\frac{dS_p^+}{dt} = -\Omega_0 S_p^+ + p_d f(\vartheta) S_p^z \sum_n \frac{S_{p+n}^+ + S_{p-n}^+}{n^3}, \qquad \Omega_0 \approx 1 - 2p_d f(\vartheta) h_{eff}^z, \tag{5.38}$$

При допущении, что пространственная намагниченность задаётся плоской волной $S_p^+ = a\exp(iqp)$, где q – безразмерное волновое число, в каждом отдельном слагаемом в (5.37) выделяется множитель перед амплитудой волны намагниченности:

$$\begin{aligned} S_{p+n}^{+} + S_{p-n}^{+} &= a\exp\big(iq(p+n)\big) + \exp\big(iq(p-n)\big) = \\ &= a\exp(iqp)\big(\exp\big(iqn\big) + \exp\big(-iqn\big)\big) = 2S_p^{+}\cos qn, \end{aligned} \tag{5.39}$$

и полная сумма в пределе бесконечной цепи определяет некоторый ряд Фурье, известный в литературе как функция Клаузена [349]:

$$\sum_{n=1}^{\infty}\frac{\cos qn}{n^3} = \mathrm{Cl}_3(q), \tag{5.40}$$

в данном случае, третьего порядка. На вещественной оси это ограниченная периодическая функция.

Таким образом, уравнение для волн намагниченности в секулярном приближении (5.35) и соответствующее им дисперсионное соотношение принимают вид:

$$\begin{gathered} i\frac{dS_p^{+}}{dt} = -\omega_q S_p^{+}, \\ \omega_q = \Omega_0 + 2p_d f(\vartheta)\langle S^z\rangle \mathrm{Cl}_3(q). \end{gathered} \tag{15}$$

В пределе длинных волн, дисперсионное соотношение является конечным, но в нём реализуется логарифмическая неаналитичность, связанная с дальнодействующим характером дипольных сил [348]:

$$\omega_{q\to 0} = \Omega_0 + 2p_d f(\vartheta)\left\langle S^z\right\rangle\left(\zeta(3) - \frac{3}{4}q^2 + \frac{1}{2}q^2\ln q\right) + \ldots. \tag{16}$$

В цепочке конечного размера длина волны ограничена, и эта особенность обходится. Кроме того, возможна реализация процедуры перенормировки Фурье-образа взаимодействия для устранения влияния этой расходимости [348]. На рис. 5.7 показаны дисперсионные соотношения, полученные при различных углах между цепочкой частиц и полем, а также их длинноволновые асимптотики.

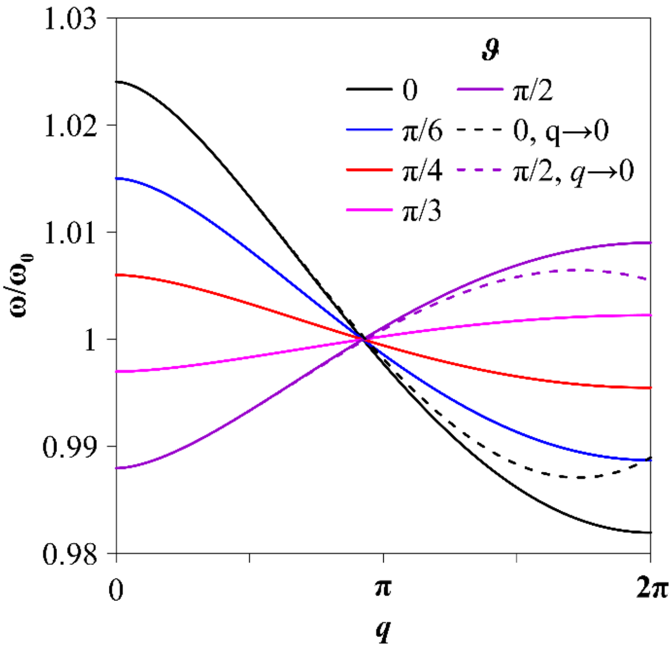


Рис. 5.7. Дисперсионные соотношения линейных волн намагниченности в одномерной спиновой цепочке с учётом всех радиусов взаимодействия при различных углах ориентации относительно внешнего поля (сплошные линии), и длинноволновые асимптотики для случаев $\vartheta = 0$, $\vartheta = \pi/2$; $p_d = 0.01$

5.3. Термодинамические свойства двумерного парамагнетика

Информация о структуре энергетического спектра спиновых волн даёт возможность рассчитать вклады коллективных возбуждений в равновесные характеристики материала в низкотемпературном пределе ($\beta\omega_0 \to \infty$). Получены выражения с точностью до первого порядка по p_d [157].

Невзаимодействующие спиновые волны являются Бозе-газом с нулевым химическим потенциалом, и поэтому среднее количество элементарных спиновых возбуждений с заданными значениями энергии и импульса даётся распределением Бозе–Эйнштейна:

$$\langle n_{\mathbf{k}} \rangle = \left(\exp(\beta\omega_0\omega_{\mathbf{k}}) - 1 \right)^{-1}. \tag{5.41}$$

В состоянии насыщения все магнитные моменты ориентируются вдоль внешнего поля, и продольная намагниченность достигает максимального значения:

$$M_0^z = -\gamma N s, \tag{5.42}$$

а поперечная намагниченность при этом стремится к нулю. Тем не менее, идеальное состояние насыщения отвечает нулевой температуре или бесконечно большому магнитному полю. При конечной спиновой температуре возникновение спиновых волн приводит к уменьшению средней намагниченности системы [28, 32, 33], которое определяется числом спиновых отклонений (5.41):

$$M^z = -\gamma\langle\sum_j S_j^z\rangle = -\gamma\sum_{\mathbf{k}}\left(S - \langle\beta_{\mathbf{k}}^\dagger\beta_{\mathbf{k}}\rangle\right) = \frac{M_0^z}{S}\left(S - \frac{1}{N}\sum_{\mathbf{k}}\langle n_{\mathbf{k}}\rangle\right). \tag{5.43}$$

Соответственно, относительная средняя намагниченность при конечной температуре равна

$$m^z = 1 - \frac{1}{SN}\sum_{\mathbf{k}}\frac{1}{\exp(\beta\omega_0\omega_{\mathbf{k}}) - 1}. \tag{5.44}$$

В термодинамическом пределе число состояний велико, и поэтому возможно произвести переход от суммирования по волновым векторам к интегрированию по первой зоне Бриллюэна. В двумерном случае при перпендикулярном направлении поля относительно материала отклонение намагниченности от насыщения даётся интегралом:

$$\begin{gathered} 1 - m_{2D}^z = \frac{v_2}{(2\pi)^2 S}\int\frac{d^2\mathbf{k}}{\exp(\beta\omega_0\omega_{\mathbf{k}}) - 1} \approx \\ \approx \frac{v_2}{(2\pi)^2 S}\sum_{m=1}^{\infty}\int_0^{2\pi} d\varphi\int_0^{\infty} dkk\exp(-m\beta\omega_0\omega_{\mathbf{k}}). \end{gathered} \tag{5.45}$$

В последнем выражении выполнено преобразование на основе формулы геометрической прогрессии, и учтено дополнительно, что дисперсионное соотношение в длинноволновом пределе является изотропным. Для трёхмерной системы такое преобразование неприменимо благодаря дальнодействующим вкладам.

Дисперсионное соотношение (5.19), разложенное в ряд по параметру дипольного взаимодействия p_d, имеет вид:

$$\omega_{\mathbf{k}} \approx 1 - p_d\left(1 + \frac{1}{2}\mathrm{Re}\,\gamma_{\mathbf{k}}\right) + O(p_d^2), \tag{5.46}$$

несекулярные члены дипольного взаимодействия вносят только квадратичные вклады. Для линейного разложения интеграл, фигурирующий в выражении для намагниченности, может быть вычислен аналитически:

$$1-m_{2D}^{z}\approx\frac{2q}{S\pi p_d}\frac{1}{\beta\omega_0}\sum_{m=1}^{\infty}\frac{\exp(-2mx)}{m},\quad x=\frac{\beta\omega_0}{2}g,\quad g=1-\frac{3}{2}p_d, \tag{5.47}$$

где $q=v_2/a_0^2$ – геометрический параметр решётки (например, для квадратной $q=1$, а для гексагональной – $q=3\sqrt{3}/2$). Бесконечный ряд в (5.47) определяет функцию полилогарифма порядка 1 [346]:

$$\mathrm{Li}_s(z)=\sum_{m=1}^{\infty}\frac{z^m}{m^s},\quad \mathrm{Li}_1(z)=-\ln(1-z), \tag{5.48}$$

поэтому намагниченность можно записать следующим образом:

$$1-m_{2D}^{z}\approx\frac{2q}{S\pi p_d}\frac{1}{\beta\omega_0}\mathrm{Li}_1\left(\exp(-2x)\right)=1-\frac{2q}{S\pi p_d}\frac{1}{\beta\omega_0}\left(x-\ln(2\sinh x)\right). \tag{5.49}$$

В трёхмерной решётке, несмотря на невозможность явно вычислить интеграл из-за анизотропии дипольного взаимодействия, следует ожидать реализации зависимости, включающей $\mathrm{Li}_{3/2}(z)$. Качественно полученное выражение для намагниченности подобно по структуре известным результатам для ферромагнитных спиновых волн, однако оно включает экспоненциальный множитель. Формула (5.49) описывает состояние вблизи насыщения в пределе $\beta\omega_0\to\infty$.

Полученное аналитическое выражение для намагниченности (5.49) применимо только при малых значениях интенсивности дипольного взаимодействия ($p_d\ll 1$) и спиновых волн, взятых в длинноволновом пределе. Поэтому оно точно описывает лишь намагниченность двумерного материала в перпендикулярном поле, а также свойства волн в трёхмерном кристалле, распространяющихся также ортогонально полю. Как было отмечено при обсуждении дисперсионных соотношений, вдоль направления поля в системе реализуются состояния с минимальной длиной волны.

Намагниченность в непосредственной близости к состоянию насыщения имеет экспоненциальную асимптотику, обусловленную наличием в спектре энергии Зеемана, вокруг которой локализуются все остальные уровни (рис. 5.8):

$$1-m_{2D}^{z}\approx\frac{2q}{S\pi p_{d}}\frac{\exp(-\beta\omega_{0}g)}{\beta\omega_{0}}\left[1+O(\exp(-\beta\omega_{0}g))\right]. \qquad (5.50)$$

Произведение p_d с ларморовской частотой в знаменателе (5.50) определяет экспоненциальную зависимость, а расходимость при $p_d = 0$ исключается. Более точное описание зависимости намагниченности от интенсивности взаимодействия может быть получено интегрированием (5.45) по первой зоне Бриллюэна с точным заданием дисперсионного соотношения и геометрии. По мере ослабления взаимодействия уменьшаются флуктуации намагниченности, и она стремится к насыщению [32, 33].

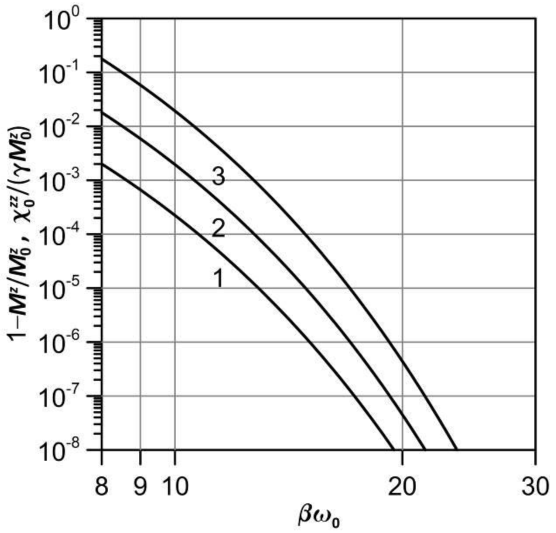


Рис. 5.8. Отклонение относительной намагниченности дипольного парамагнетика от насыщения при величине спина ионов 3/2 и различной интенсивности взаимодействия (в единицах зеемановской энергии): 1 – $p_d = 10^{-2}$; 2 – $p_d = 10^{-3}$; 3 – $p_d = 10^{-4}$

Из рис. 5.8 устанавливается также качественная зависимость характерного критического значения величины $\beta\omega_0$, которая соответствует разрушению однородного упорядоченного состояния благодаря дипольному взаимодействую. Видно, что ослабление взаимодействия приводит к уменьшению $(\beta\omega_0)_{crit}$. Критическое магнитное поле и p_d, таким образом, изменяются противоположным образом, тогда как характерная критическая температура возрастает по мере роста параметра взаимодействия. Усиление дипольного взаимодействия стимулирует коллективный отклик спиновой системы на внешнее магнитное поле, и в то же время усиливает роль тепловых флуктуаций в разупорядочивании решётки. Такая особенность обусловлена тем, что энергетически выгодной конфигурацией дипольной системы является «антиферромагнитный» порядок с противоположной ориентацией соседних магнитных моментов, выстроенных строго по или против направления магнитного поля. Описанное ранее разбиение прецессии в материале на «слои» и неустойчивость длинноволновых состояний в направлении поля также определяется этим фактором.

Статическая продольная восприимчивость вблизи насыщения зависит от температуры и внешнего поля аналогично (5.50):

$$\chi_0^{zz} = \left(\frac{\partial M^z}{\partial H_0}\right)_\beta = \gamma M_0^z \frac{\partial m^z}{\partial \omega_0} \approx \frac{2q\gamma M_0^z}{S\pi p_d} \frac{g\exp(-\beta\omega_0 g)}{\beta\omega_0}\Big(1 + O\big((\beta\omega_0)^{-2}\big)\Big), \quad (5.51)$$

или, в терминах относительной намагниченности:

$$\chi_0^{zz} \approx \gamma M_0^z g(1 - m^z). \quad (5.52)$$

Полученная зависимость – экспоненциальное уменьшение восприимчивости по мере усиления приложенного поля (снижения температуры) – согласуется с известными экспериментальными результатами для парамагнитных материалов, в частности – солей Co и Ni [350].

Применяя разложение дисперсионного соотношения до линейного порядка по параметру взаимодействия и длинноволновое приближение, получаем внутреннюю энергию двумерного парамагнетика:

$$\begin{aligned} U &= \sum_{\mathbf{k}} \varepsilon(\mathbf{k}) n_{\mathbf{k}} \approx \frac{N\nu_2}{(2\pi)^2} \int \frac{\omega_0 \omega_{\mathbf{k}} d^2\mathbf{k}}{\exp(\beta\omega_0\omega_{\mathbf{k}}) - 1} \approx \\ &\approx Ns\omega_0(1 - p_d)I - \frac{1}{2}\frac{N\nu_2\omega_0}{(2\pi)^2} p_d \int \frac{\mathrm{Re}\gamma_{\mathbf{k}} d^2\mathbf{k}}{\exp(\beta\omega_0\omega_{\mathbf{k}}) - 1} + O(p_d^2) \approx \qquad (5.53) \\ &\approx Ns\omega_0 gI + \frac{a_0^2}{8}\frac{N\nu_2\omega_0}{(2\pi)^2} p_d \int \frac{k^2 d^2\mathbf{k}}{\exp(\beta\omega_0\omega_{\mathbf{k}}) - 1} + O(p_d^2), \end{aligned}$$

где $\omega_{\mathbf{k}}$ даётся выражением (5.46). Интеграл выражается функцией $\mathrm{Li}_2(z)$:

$$U \approx \frac{2Nq\omega_0}{\pi p_d}\left(g\frac{\mathrm{Li}_1\left(\exp(-2x)\right)}{\beta\omega_0} + \frac{\mathrm{Li}_2\left(\exp(-2x)\right)}{(\beta\omega_0)^2}\right). \tag{5.54}$$

Теплоёмкость газа дипольных спиновых волн вычисляется из (5.54):

$$\begin{gathered} C_H = -\beta\left(\frac{\partial U}{\partial \beta}\right)_H = \\ = \frac{2Nq\beta\omega_0}{\pi p_d}\left(\frac{g^2\exp(-x)}{2\sinh x} + \frac{2g\mathrm{Li}_1\left(\exp(-2x)\right)}{\beta\omega_0} + \frac{2\mathrm{Li}_2\left(\exp(-2x)\right)}{(\beta\omega_0)^2}\right), \end{gathered} \tag{5.55}$$

в пределе $\beta\omega_0 >> 1$:

$$C_H \approx \frac{Nqg^2}{\pi p_d}\beta\omega_0\exp(-\beta\omega_0 g)\left[1 + O(\exp(-\beta\omega_0 g))\right]. \tag{5.56}$$

Полученная зависимость показана на рис. 5.9.

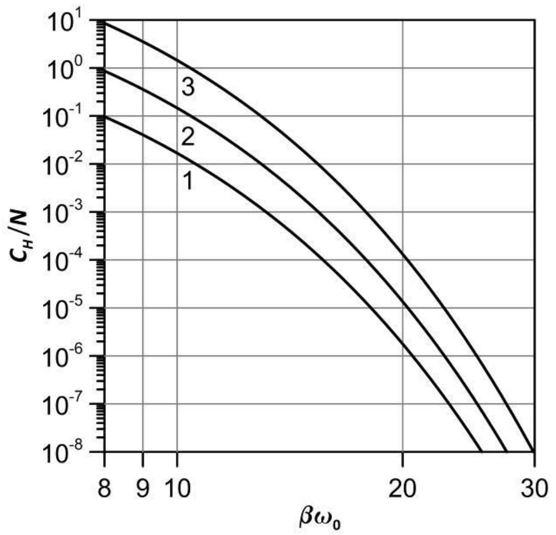


Рис. 5.9. Удельная теплоёмкость дипольного парамагнетика от насыщения при величине спина ионов 3/2 и различной интенсивности взаимодействия (в единицах зеемановской энергии): 1 – $p_d = 10^{-2}$; 2 – $p_d = 10^{-3}$; 3 – $p_d = 10^{-4}$

5.4. Магнитная восприимчивость. Линейный отклик дипольного парамагнетика

5.4.1. Поперечное поле

Динамика намагниченности низкотемпературного парамагнетика описана в рамках теории линейного отклика [336, 351]. Согласно ей, реакция на малые возмущения поля определяется корреляционной функцией магнитного момента системы:

$$\Delta M^{j}(t) = -\frac{1}{V}\int_{-\infty}^{+\infty} d\tau H^{k}(\tau)\chi_{jk}(t-\tau), \quad \chi_{jk}(t-\tau) = \left\langle\left\langle m^{j}(t), m^{k}(\tau)\right\rangle\right\rangle, \quad (5.57)$$

где $M^{j} = \left\langle m^{j}\right\rangle\big/V$ – намагниченность, m^{j} – полный магнитный момент кристалла. Амплитуда возмущения при этом принимается много меньшей продольного поля, и его действие не приводит к повороту магнитных моментов на углы порядка π/2 и более.

Применение преобразования Фурье позволяет произвести переход от интеграла по времени к интегралу от Фурье-образов корреляционной функции и внешнего поля:

$$\Delta M^{j}(t) = \frac{\mathrm{e}^{\varepsilon t}}{2\pi V}\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega H^{k}(\omega)\chi_{jk}(\omega)\mathrm{e}^{i\omega t}. \quad (5.58)$$

Корреляционная функция компонент магнитного момента фактически является динамической восприимчивостью решётки.

Предположим сначала, что возмущающее поле имеет только поперечные компоненты:

$$\vec{H}_1 = \mathrm{e}^{\varepsilon t}\left\{H^{x}(t), H^{y}(t), 0\right\}. \quad (5.59)$$

В соответствии с (5.58) эволюция компонент намагниченности описывается интегралами:

$$\Delta M^{\alpha}(t) = \frac{\mathrm{e}^{\varepsilon t}}{2\pi V}\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega H^{\beta}(\omega)\chi_{\alpha\beta}(\omega)\mathrm{e}^{i\omega t}, \quad \alpha, \beta = x, y, \mathrm{z}. \quad (5.60)$$

Компоненты тензора восприимчивости по определению являются функциями Грина (5.57), и могут быть выражены через циклические компоненты магнитного момента системы:

$$\begin{gathered}\chi_{xx} = \frac{1}{4}\left(\chi_{+-} + \chi_{-+}\right), \quad \chi_{xy} = \frac{1}{4i}\left(\chi_{-+} - \chi_{+-}\right), \\ \chi_{yx} = \frac{1}{4i}\left(\chi_{+-} - \chi_{-+}\right) = -\chi_{xy}, \quad \chi_{yy} = \frac{1}{4}\left(\chi_{+-} + \chi_{-+}\right) = -\chi_{xx}.\end{gathered} \quad (5.61)$$

X-компонента отклика намагниченности в терминах циклических составляющих:

$$\Delta M^x(t) = \frac{\mathrm{e}^{\varepsilon t}}{8\pi V}\int\limits_{-\infty}^{+\infty} d\omega \mathrm{e}^{i\omega t}\sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}\left[H^+\chi_{-+} + H^-\chi_{+-}\right]. \qquad (5.62)$$

Для описания эволюции поперечной намагниченности существенны функции Грина поперечных компонент магнитных моментов [351]:

$$\begin{gathered}\chi_{+-} = \left\langle\left\langle \beta_{\mathbf{k}}(t), \beta_{\mathbf{k}'}^{\dagger}\right\rangle\right\rangle, \qquad \chi_{-+} = \left\langle\left\langle \beta_{\mathbf{k}}^{\dagger}(t), \beta_{\mathbf{k}'}\right\rangle\right\rangle, \\ \left\langle\left\langle \beta_{\mathbf{k}}(t), \beta_{\mathbf{k}'}^{\dagger}\right\rangle\right\rangle = i\Theta(t)\left\langle\left[\beta_{\mathbf{k}}(t), \beta_{\mathbf{k}'}^{\dagger}\right]_-\right\rangle, \qquad \beta(t) = \mathrm{e}^{i\hat{H}_0 t}\beta \mathrm{e}^{-i\hat{H}_0 t},\end{gathered} \qquad (5.63)$$

где $\hat{H}_0$ – гамильтониан (5.5)–(5.7).

Уравнение для $\chi_{+-}(\omega)$:

$$i\frac{d}{dt}\left\langle\left\langle \beta_{\mathbf{k}}(t), \beta_{\mathbf{k}'}^{\dagger}\right\rangle\right\rangle = \delta(t)\left\langle\left[\beta_{\mathbf{k}}(t), \beta_{\mathbf{k}'}^{\dagger}\right]_-\right\rangle + \left\langle\left\langle\left[\beta_{\mathbf{k}}(t), \hat{H}^{(2)}\right]_-, \beta_{\mathbf{k}'}^{\dagger}\right\rangle\right\rangle. \qquad (5.64)$$

Преобразование Фурье даёт замкнутое алгебраическое уравнение:

$$(\omega - i\varepsilon)\left\langle\left\langle \beta_{\mathbf{k}}, \beta_{\mathbf{k}'}^{\dagger}\right\rangle\right\rangle(\omega) = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} + \omega_{\mathbf{k}}\left\langle\left\langle \beta_{\mathbf{k}}, \beta_{\mathbf{k}'}^{\dagger}\right\rangle\right\rangle(\omega), \qquad (5.65)$$

решением которого является:

$$\left\langle\left\langle \beta_{\mathbf{k}}, \beta_{\mathbf{k}'}^{\dagger}\right\rangle\right\rangle(\omega) = \frac{\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}}{\omega - \omega_{\mathbf{k}} - i\varepsilon} = \mathrm{V.p.}\frac{\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}}{\omega - \omega_{\mathbf{k}}} + \mathrm{i}\pi\delta(\omega - \omega_{\mathbf{k}}). \qquad (5.66)$$

где V.p. означает главное значение выражения.

Сопряжённая компонента восприимчивости вычисляется аналогичным образом:

$$\chi_{+-}(\omega) = -\frac{\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}}{\omega + \omega_{\mathbf{k}} - i\varepsilon}, \qquad \chi_{-+}(\omega) = \frac{\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}}{\omega - \omega_{\mathbf{k}} - i\varepsilon}. \qquad (5.67)$$

Подстановка их в (5.62) даёт

$$\begin{aligned}\Delta M^x(t) &= \frac{\mathrm{e}^{\varepsilon t}}{8\pi V}\int\limits_{-\infty}^{+\infty} d\omega \mathrm{e}^{i\omega t}\sum_{\mathbf{k}}\left[\frac{H^+(\omega)}{\omega - \omega_{\mathbf{k}} - i\varepsilon} - \frac{H^-(\omega)}{\omega + \omega_{\mathbf{k}} - i\varepsilon}\right] \approx \\ &\approx \frac{\mathrm{e}^{\varepsilon t}}{2(2\pi)^4}\int\limits_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int d^3\mathbf{k}\, \mathrm{e}^{i\omega t}\left[H^+(\omega)\left(\mathrm{V.p.}\frac{1}{\omega - \omega_{\mathbf{k}}} + i\pi\delta(\omega - \omega_{\mathbf{k}})\right) - \right. \\ &\qquad \left. - H^-(\omega)\left(\mathrm{V.p.}\frac{1}{\omega + \omega_{\mathbf{k}}} + i\pi\delta(\omega + \omega_{\mathbf{k}})\right)\right].\end{aligned} \qquad (5.68)$$

Отклик продольной намагниченности ΔM^z определяется компонентами восприимчивости $\chi_{z+}(t) = \left\langle\left\langle \beta^\dagger_{\mathbf{k}}\beta_{\mathbf{k}}(t), \beta_{\mathbf{k}'} \right\rangle\right\rangle$ и $\chi_{z-}(t) = \left\langle\left\langle \beta^\dagger_{\mathbf{k}}\beta_{\mathbf{k}}(t), \beta^\dagger_{\mathbf{k}'} \right\rangle\right\rangle$. В пренебрежении взаимодействием спиновых волн они равны нулю.

Рассмотрим ряд конкретных примеров внешних воздействий, полагая дисперсионное соотношение для спиновых волн известным. Ограниченное во времени воздействие приводит к возмущению магнитного порядка и возникновению поперечной компоненты намагниченности, которая убывает в процессе поперечной релаксации. Простейшим для расчёта является кратковременный импульс, который можно задать дельта-функцией:

$$H^{\pm}(t) = H_0\delta(t), \quad H^{\pm}(\omega) = H_0, \tag{5.69}$$

Он имеет сплошной спектр, и поэтому будет передавать часть энергии на возбуждение в системе спиновых волн. Вычисление отклика даёт

$$\Delta M^x(t) \propto \frac{\mathrm{e}^{\varepsilon t}}{(2\pi)^3}\int d^3\mathbf{k}\sin\omega_{\mathbf{k}}t. \tag{5.70}$$

Отсутствие знаменателя в подынтегральном выражении свидетельствует о возбуждении в системе спиновых волн всех допустимых длин с равной амплитудой.

При действии прямоугольного радиочастотного импульса длительностью 2τ с частотой заполнения Ω возможно интенсивное резонансное возбуждение спиновых волн при совпадении Ω с собственными частотами спиновых волн. Если середина импульса соответствует моменту $t = 0$, его спектр имеет удобный для аналитического расчёта вид:

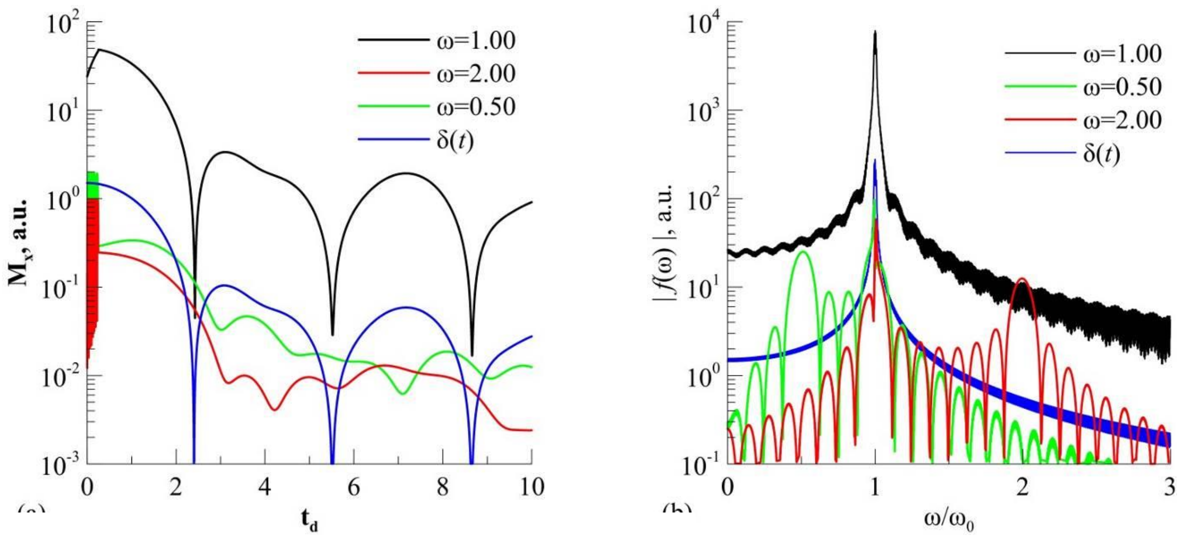
$$H^{\pm}(t) = H_0\big(\Theta(t+\tau) - \Theta(t-\tau)\big)\mathrm{e}^{\pm i\Omega t}, \quad H^{\pm}(\omega) = \frac{2\sin(\omega \mp \Omega)\tau}{\omega \mp \Omega}. \tag{5.71}$$

Выражение для поперечной намагниченности получается следующим:

$$\Delta M^x(t) \propto \begin{cases} \displaystyle\int \frac{d^3\mathbf{k}}{2(2\pi)^3}\frac{\cos\Omega t - \cos(\omega_{\mathbf{k}}t - (\Omega - \omega_{\mathbf{k}})\tau)}{\Omega - \omega_{\mathbf{k}}}, & t < \tau \\ \displaystyle\int \frac{d^3\mathbf{k}}{4(2\pi)^3}\frac{\sin(\Omega - \omega_{\mathbf{k}})\tau}{\Omega - \omega_{\mathbf{k}}}\sin\omega_{\mathbf{k}}t, & t > \tau. \end{cases} \tag{5.72}$$

Для вычисления интегралов на языке FORTRAN-90 реализована процедура трёхмерного интегрирования методом ячеек на равномерной прямоугольной сетке. Для ускорения расчётов используются параллельные вычисления по протоколу OpenMP для многопоточных процессоров. Размер используемой сетки в обратном пространстве 100×100×100.

На рис. 5.10 показаны рассчитанные численно отклики намагниченности и их спектры при воздействии на систему дельта-образного импульса, а также радиочастотных импульсов длительностью $100\,\omega_0^{-1}$ и частотами заполнения $\omega = \omega_0$, $\omega = 2\omega_0$ и $\omega = 0.5\omega_0$. Шкала времени приведена в дипольных единицах, масштаб времени $[t_d] = (p_d \omega_0)^{-1}$.



а) б)

Рис. 5.10. Отклик поперечной компоненты намагниченности дипольной системы в приближении спиновых волн: а) – спады свободной индукции и б) – их спектры при воздействии радиочастотных импульсов с различной частотой заполнения и дельта-образного импульса (в логарифмическом масштабе)

Полученные кривые демонстрируют хорошее соответствие с типичными экспериментальными и теоретическими результатами в области магнитных резонансов [93, 94, 138–144]. Отчётливо видна реализация резонансного возбуждения спиновых волн и выраженный отклик большой амплитуды на компоненты спектра возмущения, попадающие в интервал собственных частот системы. Ширина главной линии спектра пропорциональна величине дипольного взаимодействия, что согласуется с известными результатами и подтверждает физическую корректность спин-волновой модели.

5.4.2. Продольное возмущение

Доступен анализу также и отклик кристалла на изменение величины продольного внешнего магнитного поля. Пусть оно ориентировано вдоль оси *[100]* простой кубической решётки, и изменяется скачком на величину H_0 задаётся функцией Хэвисайда:

$$H^z(t) = H_0\Theta(\pm t), \qquad H^z(\omega) = H_0\left(\pi\delta(\omega) \pm \mathrm{V.p.}\frac{1}{i\omega}\right), \tag{5.73}$$

Далее поле рассматривается как нормированное на величину H_0.

Динамика поперечных компонент намагниченности при таком возмущении согласно (5.58) определяется функциями Грина $\chi_{+z}(t) = G^+(t) = \left\langle\left\langle \beta_{\mathbf{k}}(t), \beta^\dagger_{\mathbf{k}'}\beta_{\mathbf{k}'}\right\rangle\right\rangle$ и $\chi_{-z}(t) = \left\langle\left\langle \beta^\dagger_{\mathbf{k}}(t), \beta^\dagger_{\mathbf{k}'}\beta_{\mathbf{k}'}\right\rangle\right\rangle$, а продольной компоненты – функцией $\chi_{zz}(t) = G^z(t) = \left\langle\left\langle \beta^\dagger_{\mathbf{k}}\beta_{\mathbf{k}}(t), \beta^\dagger_{\mathbf{k}'}\beta_{\mathbf{k}'}\right\rangle\right\rangle$.

Уравнение движения для поперечной восприимчивости при сохранении в гамильтониане только билинейных слагаемых определяется коммутаторами

$$\left[\beta_{\mathbf{k}}, \beta^\dagger_{\mathbf{k}'}\beta_{\mathbf{k}'}\right]_- = \delta_{\mathbf{kk}'}\beta_{\mathbf{k}'}, \qquad \left[\beta^\dagger_{\mathbf{k}}, \beta^\dagger_{\mathbf{k}'}\beta_{\mathbf{k}'}\right]_- = -\delta_{\mathbf{kk}'}\beta^\dagger_{\mathbf{k}'}, \tag{5.74}$$

и имеет следующий вид:

$$(\omega - i\varepsilon)G^+_{\mathbf{kk}'}(\omega) = \delta_{\mathbf{kk}'}\left\langle \beta_{\mathbf{k}}\right\rangle + \omega_{\mathbf{k}}G^+_{\mathbf{kk}'}(\omega). \tag{5.75}$$

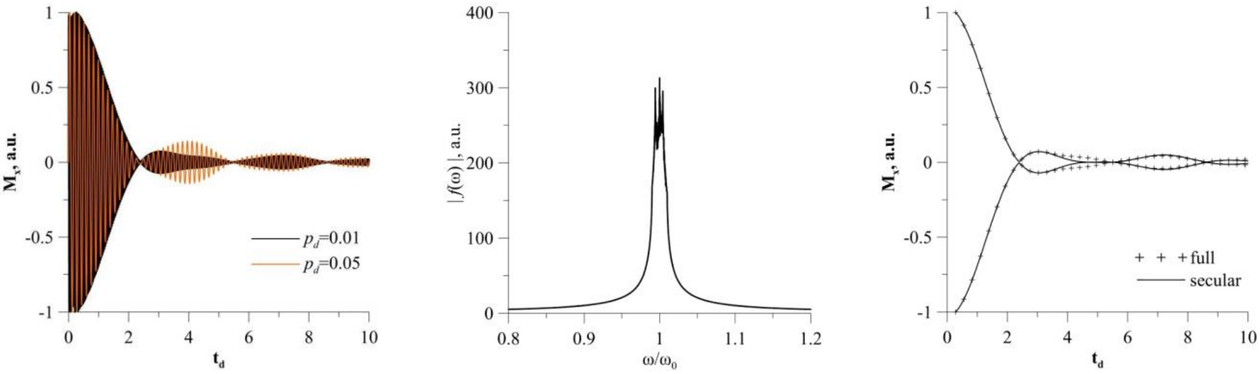
Среднее значение оператора спиновой волны $\left\langle \beta_{\mathbf{k}}\right\rangle = 0,$ поэтому

$$\chi_{+z}(\omega) \propto \delta(\omega - \omega_{\mathbf{k}}), \qquad \chi_{-z}(\omega) \propto -\delta(\omega + \omega_{\mathbf{k}}). \tag{5.76}$$

Соответственно, отклик поперечной компоненты намагниченности равен:

$$\begin{gathered}\Delta M^x(t) \propto \pm\frac{H_0 \mathrm{e}^{\varepsilon t}}{(2\pi)^3}\mathrm{V.p.}\int d^3\mathbf{k}\left[\frac{\mathrm{e}^{i\omega_{\mathbf{k}}t}}{i\omega_{\mathbf{k}}} + \frac{\mathrm{e}^{-i\omega_{\mathbf{k}}t}}{i\omega_{\mathbf{k}}}\right] = \\ = \pm\frac{H_0 \mathrm{e}^{\varepsilon t}}{(2\pi)^3}\mathrm{V.p.}\int d^3\mathbf{k}\,\frac{\mathrm{e}^{i\omega_{\mathbf{k}}t} + \mathrm{e}^{-i\omega_{\mathbf{k}}t}}{i\omega_{\mathbf{k}}} = \pm\frac{2H_0 \mathrm{e}^{\varepsilon t}}{(2\pi)^3}\mathrm{V.p.}\int d^3\mathbf{k}\,\frac{\cos\omega_{\mathbf{k}}t}{i\omega_{\mathbf{k}}}.\end{gathered} \tag{5.77}$$

На рис. 5.11 показан рассчитанный численно спад свободной индукции, вызванный скачкообразным изменением продольного магнитного поля, с учётом несекулярного вклада в гамильтониан спиновых волн, и его Фурье-спектр. Уширение спектральной линии пропорционально параметру взаимодействия. Расчёт для различных значений параметра взаимодействия показывает, что характерные дипольные времена спада свободной индукции полностью совпадают, а различие наблюдается только в амплитуде сигнала (рис. 5.11, *а*) и его поведении на больших временах, что обусловлено несекулярной частью гамильтониана (рис. 5.11, *в*).



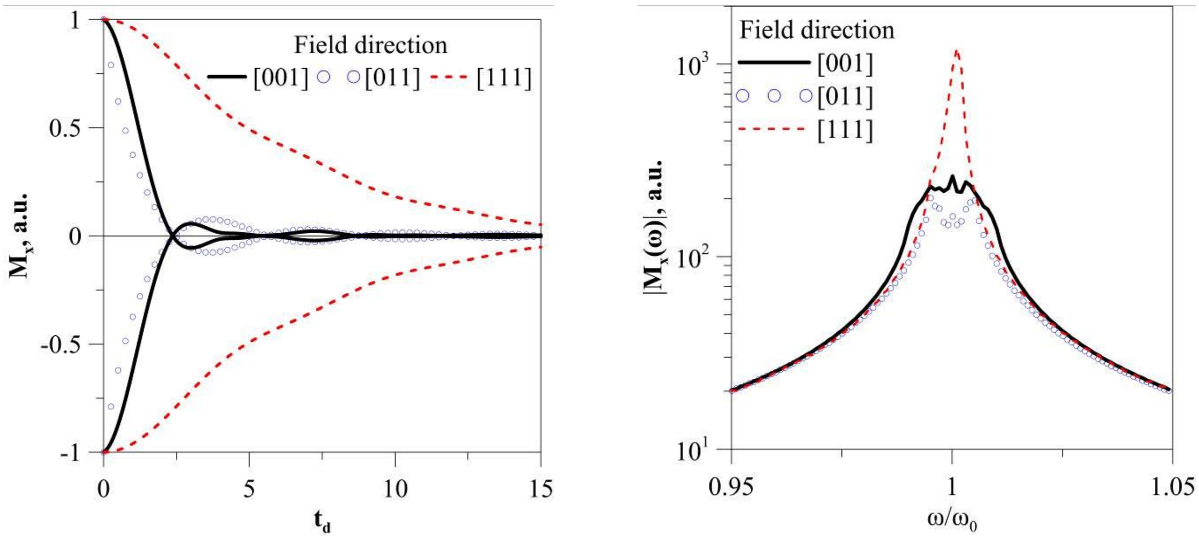
а) б) в)

Рис. 5.11. Реакция системы на продольное возмущение: а) – спад свободной индукции при скачке внешнего магнитного поля, по горизонтальной оси – дипольные времена, $p_d = 0.01$ и 0.05, б) – Фурье-спектр спада поперечной намагниченности, параметр взаимодействия $p_d = 0.01$; в) – сопоставление огибающих спада свободной индукции при скачке внешнего магнитного поля, рассчитанных с учётом и без учёта несекулярной части гамильтониана

5.4.3. Влияние ориентации постоянного поля

На рис. 5.12 показаны кривые спада свободной индукции и соответствующие им спектры, рассчитанные численно по (5.77) с использованием дисперсионных соотношений, найденных из формул (5.14), (5.15) и (5.16), отвечающих соответственно направлению внешнего поля относительно оси решётки *[100]*, *[110]* и *[111]*. Интенсивность дипольного взаимодействия $p_d = 0.01$. Сплошная линия повторяет огибающую, приведённую на рис. 5.9.

Первые два случая обусловливают формирование типичной кривой спада свободной индукции. Здесь существенную роль играет секулярная часть дипольного взаимодействия, которая определяет быстрый спад поперечной намагниченности и ширину спектральной линии порядка $2Sp_d$. Характерное время $1/p_d$ и ширина линии одинаковы для обоих случаев, а в тонкой структуре спектра (рис. 5.12, *б*) проявляются два пика, происхождение которых подобно дублету Пейка [95, 139].



а) б)

Рис. 5.12. Отклик поперечной компоненты намагниченности дипольной системы в приближении спиновых волн на скачок внешнего поля, при его различной ориентации относительно осей кристалла: а) – спады свободной индукции и б) – их спектры

Если же магнитное поле ориентировано вдоль главной диагонали кубической ячейки решётки, то секулярная часть дипольного взаимодействия для первой координационной сферы равна нулю, и спад свободной индукции определяется взаимодействиями в следующих координационных сферах, а также несекулярной частью гамильтониана. Результирующее взаимодействие в системе оказывается существенно слабее, чем в вышеописанных конфигурациях, и поперечная намагниченность убывает в течение времени порядка $1/p_d^2$. Это приводит к сужению наблюдаемой линии резонанса.

5.4.4. Асимптотика затухания намагниченности

В приближении коллективных мод устанавливается универсальное асимптотическое поведение поперечной намагниченности (5.77) на временах, бо́льших T_2. Структура дисперсионного соотношения (5.14) в пренебрежении дальнодействующими вкладами позволяет факторизовать интеграл, описывающий циклические компоненты поперечной намагниченности, разбив его на произведение трёх одинаковых по структуре множителей:

$$\int d^d\mathbf{k}\,\frac{\mathrm{e}^{\pm i\omega_{\mathbf{k}}t}}{i\omega_{\mathbf{k}}} \propto \mathrm{e}^{\pm i\omega_0 t}\left(\int_{-\pi}^{\pi} d\xi\,\frac{\mathrm{e}^{\pm i\omega_d t\cos\xi}}{1+p_d\cos\xi}\right)^d \propto \mathrm{e}^{\pm i\omega_0 t} J_0^d(t_d) + O(p_d). \qquad (5.78)$$

Частота спиновых волн в знаменателе с точностью до p_d не отличается от единицы, что позволяет привести выражение к интегральному представлению функции Бесселя 1-го рода [349]. Поскольку её амплитуда убывает пропорционально $t_d^{-1/2}$, то намагниченность в целом убывает по закону $t_d^{-3/2}$ (рис. 5.13) Учёт размагничивающего поля, выполненный численно, не приводит к существенному изменению этой зависимости. Если в системе преобладают только длинноволновые возмущения, которые могут реализоваться при воздействии короткого импульса возмущения, спад намагниченности происходит по закону $t^{-1/2}$.

Полученная оценка не учитывает процессы релаксации и рассеяния спиновых волн, поэтому определяет только ограничение сверху на асимптотику огибающей. Ослабление сигнала связано с декогеренцией магнитных моментов за счёт различия их частот [141, 148, 352, 353], и его скорость отвечает диффузионному процессу. Этот результат согласуется со степенными законами эволюции спиновых корреляционных функций, поперечных компонент намагниченности в одномерных системах, ансамблях NV-центров.

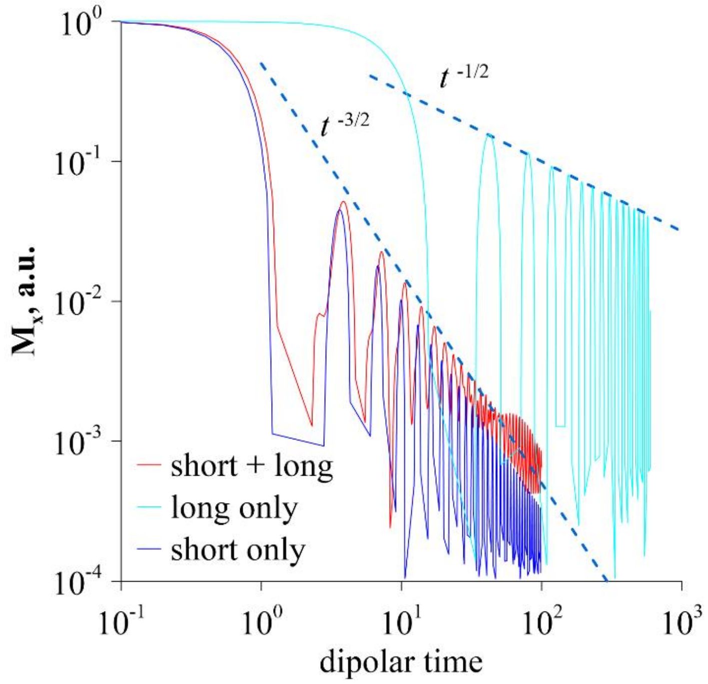


Рис. 5.13. Сопоставление рассчитанного численно спада свободной индукции с найденной асимптотической оценкой сигнала

Аналогичный результат реализуется при моделировании кольцевого спинового кластера (см. п. 5.2.4, [160]) и одномерной цепочки (см. п. 5.2.5, [163]). Вычисление отклика на дельта-образный импульс (5.70) с подстановкой в него дисперсионного соотношения (5.33) приводит к асимптотическому спаду по закону $t^{-1/2}$. Суммарная намагниченность, создаваемая конечным числом колебательных мод:

$$M_x(t) \sim \operatorname{Im} \sum_n \exp\left(i\left(1 - g(\vartheta)\cos\frac{2\pi n}{N}\right)t\right),$$
$$g(\vartheta) = p_d(S+2)(1-3\cos^2\vartheta). \tag{5.79}$$

Огибающая этого сигнала может быть получена интегрированием по n в пределе большого числа частиц в кластере:

$$\sum_n \exp\left(-itg(\vartheta)\cos\frac{2\pi n}{N}\right) \approx \frac{1}{2\pi}\int_0^{2\pi} d\varphi \exp\left(-itg(\vartheta)\cos\varphi\right) = J_0\left(g(\vartheta)t\right),$$
$$M_x(t) \sim \sin(t) J_0\left(g(\vartheta)t\right). \tag{5.80}$$

и, таким образом, зависимость полной намагниченности от времени определяется функцией Бесселя с асимптотикой $t^{-1/2}$.

Суммирование сигналов релаксации намагниченности от кольцевых кластеров с различной ориентацией относительно внешнего поля, полученных в спин-волновом режиме:

$$M_{x,\Sigma}(t) \sim 2\sin(t)\int_0^{\pi/2} d\vartheta \sin\vartheta J_0\left(g(\vartheta)t\right). \tag{5.81}$$

приводит к релаксации по закону t^{-1} на больших временах ($M_x(t) \sim t_r/(2t)$). При этом начальный этап релаксации описывается гауссовой кривой $M_x(t) \sim \exp(-t^2/(2t_r^2))$ (рис. 5.14).

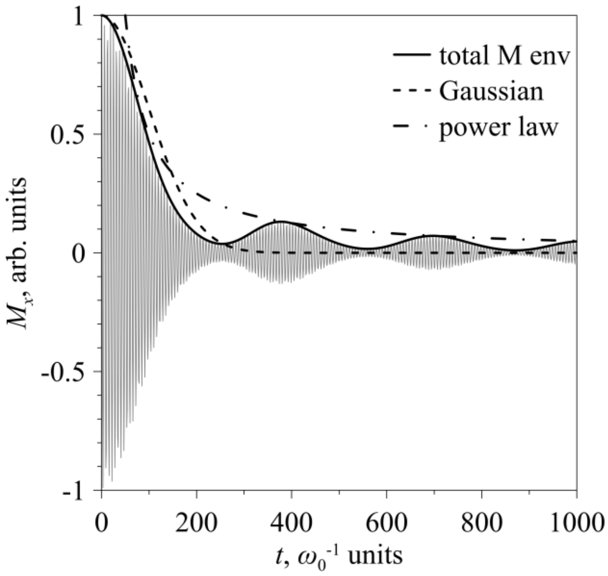


Рис. 5.14. Суммарный сигнал релаксации намагниченности ансамбля кольцевых кластеров одинакового радиуса, случайно ориентированных относительно постоянного внешнего полю, вычисленный в спин-волновом режиме

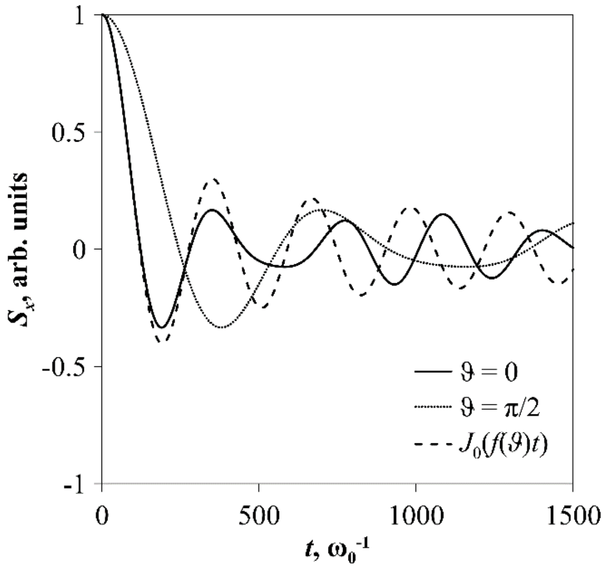


Рис. 5.15. Огибающие сигнала линейной цепочки с p_d=0.01, полученные в приближении линейных волн для двух направлений внешнего поля; штриховой линией показан сигнал, найденный в приближении взаимодействия только ближайших соседей

Огибающая поперечной намагниченности линейных волн в одномерной цепочке в приближении ближайших соседей точно выражается функцией Бесселя $J_0\left(p_d(1-3\cos^2\vartheta)t\right)$ с асимптотикой $t^{-1/2}$. На рис. 5.15 показан результирующий сигнал цепочки, в которой возбуждено множество отдельных мод, полученный интегрированием по волновому числу:

$$M_x \sim \int_0^{\pi} dq \exp\left(i\Omega_0 t - iqp\right) \exp\left(2ip_d(1-3\cos^2\vartheta)\mathrm{Cl}_3(q)\left\langle S^z\right\rangle t\right). \qquad (5.82)$$

Качественно его вид отвечает картине поперечной релаксации с характерным временем T_2, определяемым энергией взаимодействия и углом ориентации системы относительно внешнего поля. При учёте парных взаимодействий со всеми возможными радиусами вид огибающей уже не соответствует точно функции Бесселя, но зависимость остаётся ограничена таким же степенным законом $t^{-1/2}$.

5.5. Заключение

В настоящей главе построено спин-волновое описание парамагнитных систем с дипольной связью. Реализован переход от спинового гамильтониана к спин-волновому на основе преобразования Холстейна–Примакова. Оно применимо при условии, что система находится вблизи состояния магнитного насыщения, которое в случае парамагнетика обеспечивается низкой температурой и/или сильным приложенным внешним полем. Наличие поля и связанных с ним зеемановских уровней энергии всех магнитных моментов системы определяет существенное отличие равновесных термодинамических свойств системы от типичных систем с обменным взаимодействием. Другим значимым фактором является анизотропия взаимодействия – направление вдоль приложенного поля неэквивалентно ортогональным, в отличие от изотропного гамильтониана Гейзенберга.

Для конкретных примеров – трёхмерного кристалла с простой кубической решёткой, двумерной квадратной и гексагональной решёток – получены дисперсионные соотношения спиновых волн, соответствующие различным ориентациям внешнего магнитного поля. Все энергии волн оказываются локализованы в узком интервале (порядка относительной величины дипольного взаимодействия) вокруг энергии Зеемана, что ограничивает возможности неупругого рассеяния спиновых волн друг на друге, и основным процессом их релаксации поэтому следует ожидать спин-решёточные взаимодействия.

Показано, что в направлении вдоль поля система проявляет неустойчивость к возникновению коротких спиновых волн с длиной порядка постоянной решётки, тогда как в ортогональном полю направлении наиболее устойчивы длинные волны. В совокупности в трёхмерном кристалле это обусловливает разнонаправленную прецессию магнитных моментов в соседних атомных плоскостях. Рассчитаны равновесные термодинамические характеристики решётки – намагниченность, продольная статическая восприимчивость, удельная внутренняя энергия и удельная теплоёмкость. Зеемановский уровень энергии, доминирующий в спектре спиновых волн, приводит к возникновению в температурных зависимостях перечисленных характеристик множителей, экспоненциально затухающих при нулевой температуре.

С использованием формализма теории линейного отклика реализован расчёт компонент тензора восприимчивости и кривых спада свободной индукции, соответствующих возмущениям поперечного и продольного поля. Показано, что в целом спин-волновое описание даёт результаты, сходные с классическими сведениями теории магнитного резонанса. Поведение кривых спада намагниченности на малых временах, ширина и тонкая структура спектров соответствуют типичным закономерностям ЯМР и ЭПР. Однако в дипольном парамагнетике имеет место быстрое перераспределение энергии от коротких волн к длинным, которые определяются секулярной частью дипольного гамильтониана, доминируют на больших временах и обеспечивает универсальную асимптотику спада свободной индукции.

Глава 6. Электронные свойства объёмных углеродных наноструктур

В настоящей главе изучаются особенности электронных и магниных свойств углеродных композитных материалов, в рамках проекта Международной исследовательской группы в составе коллективов ПГНИУ и университета г. Луисвилль. Основным объектом изучения являются углеродные нанооболочки – полые сферические структуры с многослойной углеродной (графитовой) стенкой.

Реализованный на практике процесс синтеза оболочек позволяет получать в первую очередь углеродные сферы, содержащие металлическое (ферромагнитное) ядро размером единицы нм. При необходимости, вытравливание азотной кислотой позволяет получать полые структуры из чистого углерода. Для успешных практических применений требуется прогнозировать электрические и магнитные характеристики синтезируемого материала с учётом случайности размера частиц, что и является основной целью настоящей главы.

6.1. Энергетический спектр электронов в сферической углеродной нанооболочке

Технологии, основанные на использовании углеродных наноматериалов, продолжают интенсивно развиваться благодаря перспективности их электрических и электронных свойств, а также многообразием возможных углеродных наноструктур, открывающим возможности их использования в широком спектре приложений [354]. Среди модификаций углерода особое место занимают однослойные и многослойные замкнутые структуры – фуллерены различной размерности и сферические углеродные оболочки диаметром порядка нескольких нм (рис. 6.1) [253, 304]. Сравнительная простота их синтеза и функционализации делает данные материалы удобным объектом для экспериментов в области создания быстрых электронных устройств, а также накопителей энергии. Например, при функционализации данных материалов элементами типа водорода, азота или фтора происходит увеличение удельного электросопротивления и ширины запрещённой зоны, что обусловливает возможность создания полупроводниковых структур [251–254].

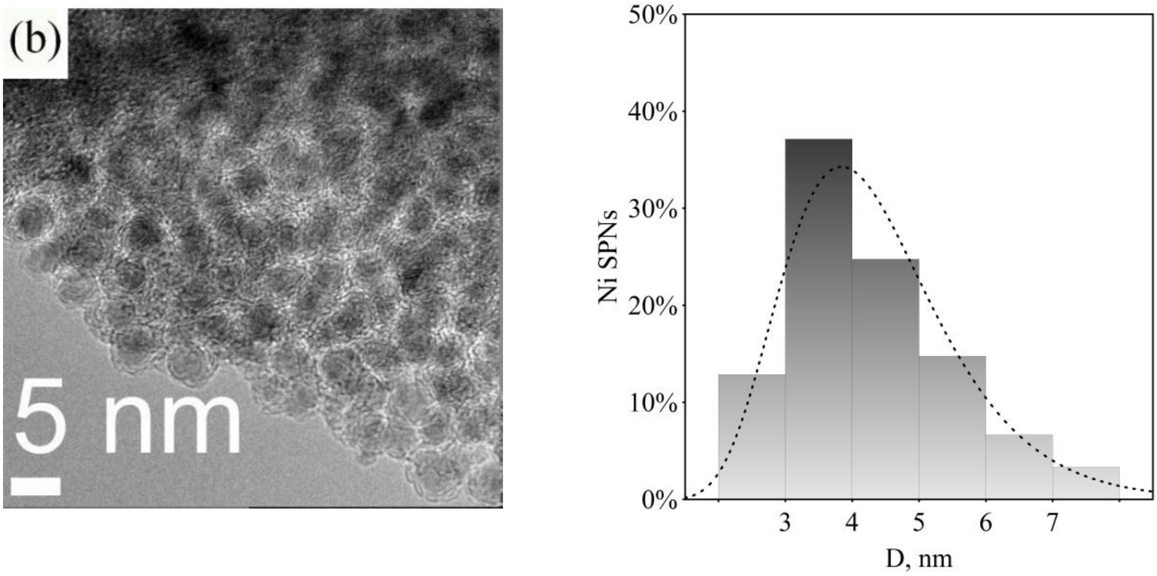


Рис. 6.1. ПЭМ-изображение структуры углеродных нанооболочек (слева) и измеренное по фотографиям распределение их размеров с аппроксимацией логнормальной зависимостью (справа) [253]

В перечисленных работах, выполненных коллективом кафедры нанотехнологий и микросистемной техники ПГНИУ, а также университета г. Луисвилль (США) разработана и представлена технология синтеза нанооболочек, включающих ядра ферромагнитных элементов Ni, Co и Fe. Электронная микроскопия непосредственно показывает, что синтезируемый материал состоит из металлических наночастиц указанных элементов, покрытых одним или несколькими слоями углерода. Последующее травление в кислоте позволяет получить стабильные пустотелые оболочки. Синтез в экспериментах производится посредством термолиза прекурсора в интервале температуры 500–800 °C, и при температурах до 600 °C происходит медленный рост размера металлических наночастиц до 3–5 нм. При дальнейшем увеличении температуры процесса Оствальдовская перекристаллизация за время синтеза приводит к формированию частиц металла размерами уже до 50–100 нм. Для Fe пороговое значение температуры ниже, и даже при 600 °С в синтезированном материале возникают крупные зёрна металла [253].

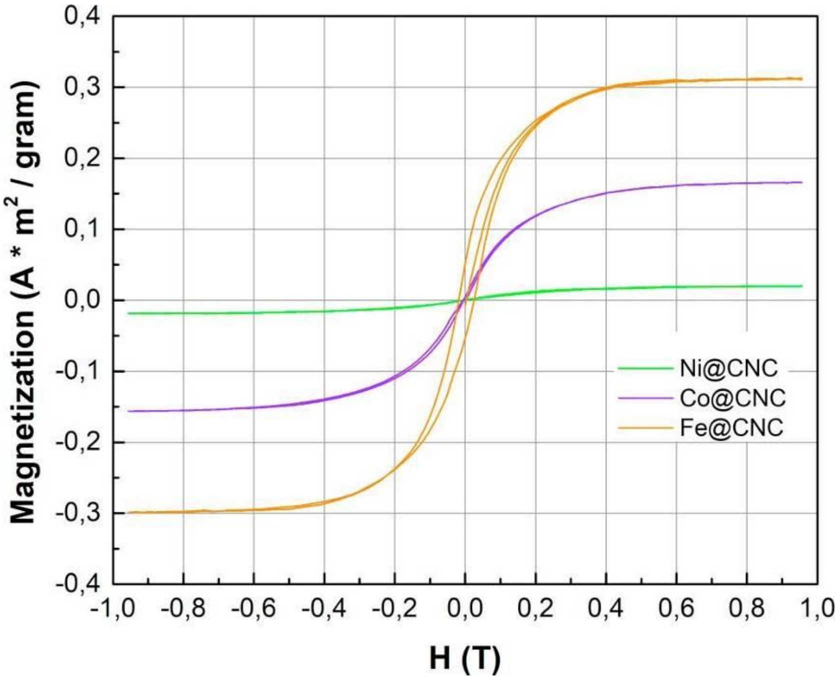


Рис. 6.2. Измеренная намагниченность синтезированных углеродных нанооболочек с металлическими ядрами [253]

Измерение намагниченности синтезированных наночастиц Ni и др., покрытых слоями углерода (рис. 6.2), выполненное Рудаковым Г. А. (ПГНИУ, Пермь / Луисвилль, США), показывает, что гистерезис для металлических ядер нанометрового размера практически отсутствует, что, в совокупности с оценкой критического радиуса домена, согласуется с предположением о формировании однодоменных частиц Ni и Co в ходе синтеза. Высокое значение магнитного момента таких ядер доминирует в свойствах материала, и вклад углерода становится пренебрежимо малым. Частичное или полное вытравливание металлических включений из оболочек обусловливает, очевидно, ослабление намагниченности и восприимчивости материала. Систематических измерений для такой ситуации в рамках перечисленных работ не производилось, в связи с чем возникла необходимость разработки теоретической модели, описывающей свойства наноразмерной углеродной оболочки.

Для формулировки достоверной модели необходимо знание ключевых особенностей энергетического спектра валентных электронов в углеродных слоях в составе оболочки, а также разрешённых переходов между различными электронными состояниями. Ввиду дискретности структуры и относительно малого числа атомов спектр энергии ещё не будет сплошным, хотя и должен включать большое число отдельных уровней. В работах [314–316] представлен подробный анализ для фуллеренов фиксированной размерности, что не в полной мере отвечает задачам синтеза нанооболочек. Хотя характерный средний размер оболочек контролируется в процессе синтеза, он, как и число образующих атомов углерода, случаен [253]. Это определяет необходимость построения масштабируемой модели для описания энергетического спектра углеродной сферы произвольного размера.

В настоящей работе представлен один из возможных подходов к решению сформулированной выше проблемы. Реализовано построение квантово-механической модели на основе решёточного гамильтониана Хаббарда с осреднением в приближении сплошной среды. Ввиду большого радиуса оболочек относительно длины связей «углерод–углерод» в качестве базовой модели используется гамильтониан идеального графена. Учтена возможность функционализации углерода ионами другого элемента. Рассчитаны энергетические спектры и частоты, соответствующие разрешённым переходам, в ИК-, оптической и УФ-областях электромагнитного спектра. Обнаружено, что структура дискретного спектра качественно совпадает с энергетическими зонами чистого и функционализированного графена. Рост числа состояний по мере увеличения радиуса оболочки и числа формирующих её узлов приводит к уменьшению расстояния между уровнями, тогда как положение характерных точек спектра не изменяется. Продемонстрирован основной механизм формирования запрещённой зоны в спектре материала.

6.1.1. Модель Хаббарда для углеродной оболочки

В качестве базовой теоретической модели углеродного материала принят гамильтониан монослоя графена в приближении ближайших соседей [308], дополненный кулоновским отталкиванием электронов и возможностью их перехода с узлов решётки углерода на ионы примеси и обратно [254]:

$$\hat{H} = -t \sum_{j,\delta,\sigma} \left(a_{j\sigma}^{\dagger} b_{j+\delta,\sigma} + b_{j\sigma}^{\dagger} a_{j-\delta,\sigma} \right) + U \sum_{j} \left(n_{j\uparrow}^{a} n_{j\downarrow}^{a} + n_{j\uparrow}^{b} n_{j\downarrow}^{b} \right) -$$
$$- \rho \Delta \sum_{j,\sigma} \left(a_{j\sigma}^{\dagger} d_{j\sigma} + d_{j\sigma}^{\dagger} a_{j\sigma} + b_{j\sigma}^{\dagger} f_{j\sigma} + f_{j\sigma}^{\dagger} b_{j\sigma} \right), \tag{6.1}$$
$$n_{j\sigma}^{a} = a_{j\sigma}^{\dagger} a_{j\sigma}, \quad n_{j\sigma}^{b} = b_{j\sigma}^{\dagger} b_{j\sigma},$$

где a, b – фермиевские операторы уничтожения и рождения электрона со спином σ на узле с номером j, относящемся к подрешётке углерода А и В, соответственно, d, f – операторы уничтожения и рождения электронов на ионах примеси, также относящихся к подрешёткам А и В, $\boldsymbol{\delta}$ – радиус-вектор от узла j к ближайшим соседним узлам, n – операторы числа электронов. Операторы удовлетворяют антикоммутационным соотношениям:

$$\left\{ a_{j\sigma}, a_{k\sigma'}^{\dagger} \right\} = \left\{ b_{j\sigma}, b_{k\sigma'}^{\dagger} \right\} = \left\{ d_{j\sigma}, d_{k\sigma'}^{\dagger} \right\} = \left\{ f_{j\sigma}, f_{k\sigma'}^{\dagger} \right\} = \delta_{jk} \delta_{\sigma\sigma'}, \tag{6.2}$$

антикоммутаторы любых других комбинаций a, b, d, f равны нулю.

Схематично структура монослоя углерода показана на рис. 6.3. Модель (6.1) принципиально может быть без существенных изменений применена и к другим конфигурациям наноструктур углерода и иных материалов. Свойства модели определяются следующими параметрами: t – матричный элемент перехода (интеграл перескока) электрона между двумя узлами решётки, U – энергия кулоновского отталкивания электронов с различными спинами, находящихся на одном узле решётки, Δ – матричный элемент перехода между примесью и узлами решётки, ρ – относительная концентрация примеси, вероятность нахождения примесного иона на узле j. Влияние внешних полей и магнитное взаимодействие электронов не учитываются. Типичные значения перечисленных параметров составляют единицы эВ.

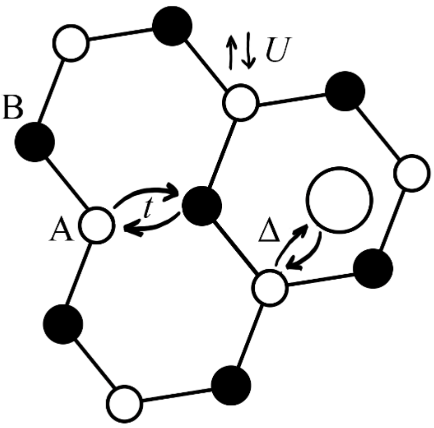


Рис. 6.3. Схематическая структура кристаллической решётки однослойного углеродного наноматериала с указанием параметров модели Хаббарда

Для нелинейных кулоновских слагаемых используется упрощение, полученное в рамках приближения среднего поля:

$$n_{j\uparrow}^{X} n_{j\downarrow}^{X} \approx \langle n_{\uparrow} \rangle X_{j\downarrow}^{\dagger} X_{j\downarrow} + \langle n_{\downarrow} \rangle X_{j\uparrow}^{\dagger} X_{j\uparrow}, \tag{6.3}$$

где в угловых скобках записываются средние значения числа электронов с заданными ориентациями спина на узлах. В отсутствие магнитного поля с высокой степенью точности можно считать, что оба средних равны 1/2:

$$\langle n_{\sigma} \rangle \approx \langle n_{-\sigma} \rangle \approx \frac{1}{2},$$

поскольку энергия электронов в этом случае не зависит от спина.

Эволюция во времени операторов $a_{j\sigma}$, $b_{j\sigma}$, $d_{j\sigma}$ и $f_{j\sigma}$ определяется уравнениями Гейзенберга (здесь и далее время обозначено как τ во избежание путаницы с интегралом перехода t):

$$i\frac{dX}{d\tau} = [X, H].$$

Благодаря приближению среднего поля (3) все они являются линейными, а электронные подсистемы с противоположной ориентацией спинов – независимыми друг от друга. Непосредственное вычисление соответствующих коммутаторов согласно (2) приводит к следующей системе уравнений:

$$
\begin{aligned}
& i\frac{da_{j\sigma}}{d\tau} = -t\sum_{\delta} b_{j+\delta,\sigma} - \rho\Delta d_{j\sigma} + U\langle n_{-\sigma}\rangle a_{j\sigma}, \\
& i\frac{db_{j\sigma}}{d\tau} = -t\sum_{\delta} a_{j-\delta,\sigma} - \rho\Delta f_{j\sigma} + U\langle n_{-\sigma}\rangle b_{j\sigma}, \\
& i\frac{dd_{j\sigma}}{d\tau} = -\rho\Delta a_{j\sigma}, \quad i\frac{df_{j\sigma}}{d\tau} = -\rho\Delta b_{j\sigma}.
\end{aligned}
\tag{6.4}
$$

Система уравнений для операторов со спинами $-\sigma$ имеет такой же вид.

6.1.2. Приближение сплошной среды

Система уравнений (6.4) записана для общего случая, геометрия конкретной решётки определяется векторами $\boldsymbol{\delta}$. Стандартным подходом для регулярной кристаллической решётки является использование разложения функций на узлах по плоским волнам, периодичность которых определяется периодичностью структуры решётки [27]. В случае же, когда решётка свёрнута в трубку или сферу, движение электронов становится финитным по одной или нескольким координатам, в результате чего спектр плоских волн должен быть заменён на набор дискретных волновых функций, симметрия которых отвечает симметрии атомной структуры.

К сожалению, построение базиса волновых функций на дискретной решётке большой размерности является нетривиальной задачей, которая, по-видимому, не имеет аналитического решения в общем случае. В работах [314–316] рассмотрены частные случаи с заранее заданной размерностью системы по циклическим координатам, и обобщение этих результатов на системы произвольного размера не осуществлялось ввиду резко возрастающей по мере увеличения размерности задачи сложности учёта особенностей решётки, нарушения правильной структуры пяти-, семиугольными и другими ячейками, без наличия которых недостижимо замыкание углеродной плоскости в сферу, реализации состояний, описываемых группами высокой симметрии.

В связи с перечисленными трудностями, представляет интерес описание динамики электронов в приближении сплошной среды. Для решёток, включающих сотни узлов, например, сферических углеродных нанооболочек, размер которых в ходе синтеза получается случайным, и потому требуется построение теории, обеспечивающей возможность учёта произвольного числа узлов решётки, такой подход представляется оправданным как минимум для качественного анализа свойств системы. Для крупных сферических оболочек (диаметром несколько нм и более) возможно также пренебречь нарушением гексагональной структуры, полагая решётку всюду локально плоской, но с высоким радиусом кривизны.

Переход к пределу сплошной среды производится аналогично (2.14). Решёточные операторы рассматриваются как непрерывные функции координат:

$$X_{j\sigma} \to X_{\sigma}(\boldsymbol{r}_j), \dots .$$

Это позволяет использовать разложение в ряд Тейлора в членах уравнений, описывающих переходы на соседние узлы решётки или взаимодействия электронов, относящихся к разным узлам [327]:

$$\begin{aligned} X_{j+\delta,\sigma} &\to X_{\sigma}(\boldsymbol{r}_j + \boldsymbol{\delta}) \approx X_{\sigma}(\boldsymbol{r}_j) + \boldsymbol{\delta} \cdot \nabla X_{\sigma}(\boldsymbol{r}_j) + \\ &+ \frac{1}{2}\frac{\partial^2 X_{\sigma}(\boldsymbol{r}_j)}{\partial x^{\mu} \partial x^{\nu}} \delta^{\mu}\delta^{\nu} + \frac{1}{3!}\frac{\partial^3 X_{\sigma}(\boldsymbol{r}_j)}{\partial x^{\mu} \partial x^{\nu} \partial x^{\lambda}} \delta^{\mu}\delta^{\nu}\delta^{\lambda} + \dots, \end{aligned} \tag{6.5}$$

где по индексам μ, ν, λ, обозначающим компоненты векторов, производится суммирование. С учётом того, что в векторы $\boldsymbol{\delta}$ в решётке с большим числом узлов могут быть ориентированы практически в любом направлении, а длина связи в среднем постоянная и равна a_0 = 0.14 нм (межатомное расстояние в идеальной графеновой решётке [308, 309]), получаются следующие преобразования сумм операторов по $\boldsymbol{\delta}$:

$$\sum_{\delta} X_{j\pm\delta,\sigma} \approx \left(3X_{\sigma} + \frac{3a_0^2}{4}\nabla^2 X_{\sigma} \right).$$

Здесь Z = 3 – координационное число. Выполненное преобразование отвечает приближению изотропной среды, и не содержит никакой информации о структуре решётки, кроме Z и средней длины связи. Градиентное слагаемое при реализованном осреднении исключается. Модификация модели для учёта анизотропии системы требует дополнительного анализа с использованием функции распределения векторов $\boldsymbol{\delta}$, и потенциально может быть описано как возмущение изотропной модели. Следует отметить, что такое же преобразование сумм имеет в место и в других кристаллических решётках, допускающих преобразование инверсии.

Таким образом, уравнения эволюции решёточных операторов (6.4) в первом приближении аппроксимируются следующей системой уравнений в частных производных:

$$
\begin{aligned}
& i\frac{\partial a_\sigma}{\partial \tau} = -3t\left(1+\frac{a_0^2}{4}\nabla^2\right)b_\sigma - \rho\Delta d_\sigma + U\left\langle n_{-\sigma}\right\rangle a_\sigma, \\
& i\frac{\partial b_\sigma}{\partial \tau} = -3t\left(1+\frac{a_0^2}{4}\nabla^2\right)a_\sigma - \rho\Delta f_\sigma + U\left\langle n_{-\sigma}\right\rangle b_\sigma, \\
& i\frac{\partial d_\sigma}{\partial \tau} = -\rho\Delta a_\sigma, \qquad i\frac{\partial f_\sigma}{\partial \tau} = -\rho\Delta b_\sigma.
\end{aligned}
\tag{6.6}
$$

6.1.3. Верификация модели для углеродной плоскости

Модель (6.6) определяет изотропное дисперсионное соотношение для электронов. Именно, при подстановке решения в виде плоских волн $\exp(i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r})$ реализуется изотропный энергетический спектр:

$$
\frac{\omega}{t} = \pm\left(3-\frac{3q^2a_0^2}{4}\right)
\tag{6.7}
$$

Энергия частиц в этом случае обращается в нуль на окружности $qa_0 = 2$, которая является вписанной для зоны Бриллюэна графена. Таким образом, полученный в данном приближении спектр не содержит точек Дирака, характерных для углерода, и связанных с ними конических структур на поверхности Ферми. Применимость модели для описания плоской решётки ограничена, и поэтому возникает необходимость дополнительной верификации реализованного приближения сплошной среды.

Однако при высокой степени нерегулярности, обусловленной дефектами и отклонением формы решётки от плоскости с изменением углов между связями следует ожидать улучшения согласования предложенной модели с характеристиками материала. Учёт старших членов в разложении (6.5) позволяет преодолеть это ограничение уже в следующем порядке [322]. Удерживание третьих производных в ряду Тейлора даёт дисперсионное соотношение вида

$$\frac{\omega}{t} = \pm\left(3 - \frac{3q^2a_0^2}{4} + \frac{ia_0^3}{8} q_x\left(q_x^2 - 2q_y^2\right)\right). \tag{6.8}$$

Данная функция имеет 6 нулей в точках, равномерно расположенных на окружности радиусом $2/a_0$ (рис. 6.4):

$$Q_{1,2} = \frac{1}{a_0}\{0;\ \pm 2\}, \qquad Q_{3,4,5,6} = \frac{1}{a_0}\left\{\pm\frac{2}{\sqrt{3}};\ \pm\frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{3}}\right\}. \tag{6.9}$$

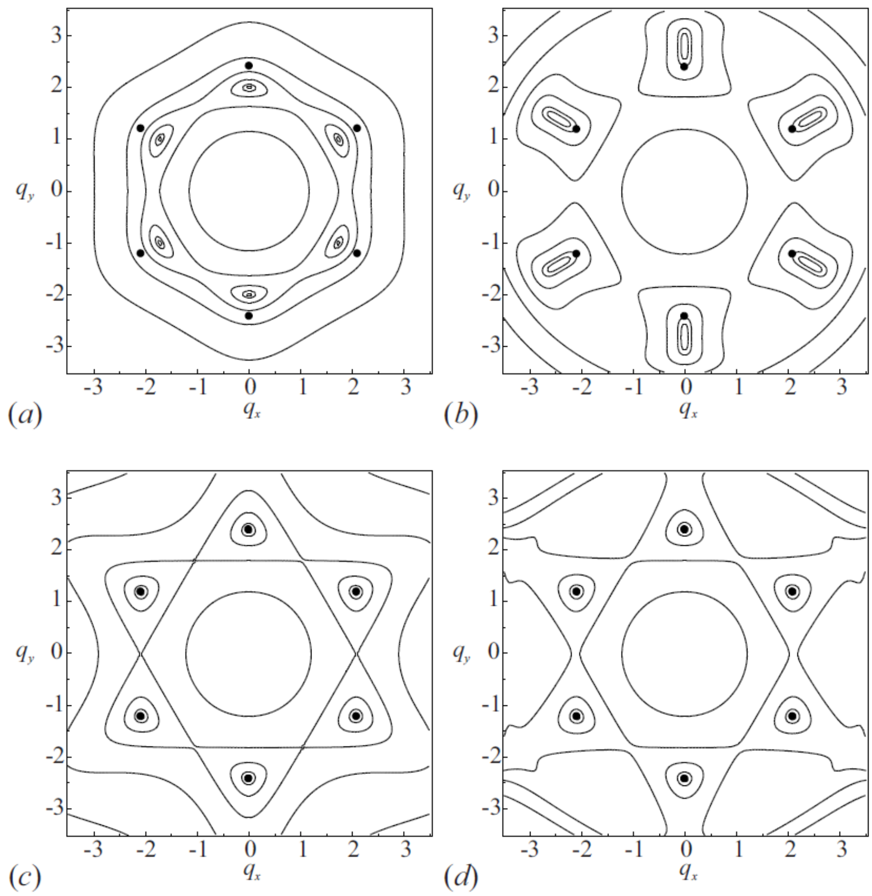


Рис. 6.4. Изолинии энергетического спектра, вычисленные в рамках модели сплошной среды с удержанием членов разложения до: *a*) – 3-го, *b*) – 5-го, *c*) – 7-го, *d*) – 9-го порядка. Изображены уровни энергии: 0, 0.1*t*, 0.2*t*, 0.5*t*, 1.0*t*, 2.0*t*, 5.0*t*. Точками обозначены положения конусов Дирака идеального графена

Разложение дисперсионного соотношения вблизи этих точек подтверждает приближённую реализацию конусов Дирака. Последние, оказываются деформированными, и, например, в окрестности Q_1 энергетический спектр принимает вид

$$\frac{\omega}{t} = \pm 3\sqrt{\frac{k_x^2}{4} + k_y^2}. \tag{6.10}$$

Повышение порядка разложения приводит к последовательному уточнению расположения точек Дирака, за что отвечают чётные производные, и формы конусов, определяемой нечётными членами ряда. Из рис. 6.4 видно, что в пределах точности построения графика их положения в модели сплошной среды и точном расчёте совпадают, а структура изолиний энергии вокруг долин приближается к локально изотропной. Ожидается, что при выполнении осреднения по направлениям волновых векторов в деформированной решётке, например, в сферической оболочке, включающей не только гексагональные ячейки, но и структурные элементы из другого числа атомов, вклад нечётных порядков будет уменьшаться вплоть до пренебрежимо малых значений.

Таким образом, подход на базе модели сплошной среды позволяет получить приближенный энергетический спектр плоских электронных волн в углеродном монослое с достоверной реализацией конусов Дирака. Этот результат подтверждает применимость разработанной модели к описанию различных углеродных структур. Ожидается, что учёт старших порядков разложения позволит уточнять количественные характеристики различных углеродных композитов, однако уже первое неисчезающее приближение даёт достоверные сведения об особенностях наблюдаемых оптических и магнитных свойств материалов. Представленная модель, формулируемая в виде пары связанных уравнений Шрёдингера для волновых функций электронов, относящихся к различным подрешёткам углерода, может быть легко адаптирована к структурам иной геометрии.

6.1.4. Модель сферической оболочки

Для сферического монослоя углерода координата электрона определяется полярным (ϑ) и азимутальным (ϕ) углами, поэтому операторы электронных амплитуд в (6) могут быть представлены в виде разложения по сферическим гармоникам:

$$
\begin{aligned}
&X_\sigma(\boldsymbol{r}_j,t)=\sum_{l=0}^{\infty}\sum_{m=-l}^{l}X_{\sigma,lm}(t)Y_{lm}(\vartheta,\phi),\\
&a_0^2\nabla^2X_\sigma=\frac{a_0^2}{R^2}\sum_{l=0}^{\infty}\sum_{m=-l}^{l}X_{\sigma,lm}\nabla_{\vartheta,\phi}Y_{lm}(\vartheta,\phi)=\\
&\qquad=-\frac{a_0^2}{R^2}\sum_{l=0}^{\infty}\sum_{m=-l}^{l}l(l+1)X_{\sigma,lm}Y_{lm}(\vartheta,\phi),\ \dots\ .
\end{aligned}
\tag{6.11}
$$

В результате задача преобразуется к линейной системе обыкновенных дифференциальных уравнений для амплитудных множителей волновых функций:

$$
\begin{aligned}
&i\frac{\partial a_\sigma}{\partial\tau}=tZ\left(\frac{a_0^2l(l+1)}{2R^2}-1\right)b_\sigma-\Delta d_\sigma+U\left\langle n_{-\sigma}\right\rangle a_\sigma,\\
&i\frac{\partial b_\sigma}{\partial\tau}=tZ\left(\frac{a_0^2l(l+1)}{2R^2}-1\right)a_\sigma-\Delta f_\sigma+U\left\langle n_{-\sigma}\right\rangle b_\sigma,\\
&i\frac{\partial d_\sigma}{\partial\tau}=-\rho\Delta a_\sigma,\quad i\frac{\partial f_\sigma}{\partial\tau}=-\rho\Delta b_\sigma.
\end{aligned}
\tag{6.12}
$$

Собственные частоты решений системы определяют энергетический спектр электронов в углеродной оболочке.

6.2. Энергетический и оптический спектр однослойной оболочки

6.2.1. Уровни энергии

Построение общего решения уравнений (6.12) приводит к вычислению определителя блочно-диагональной матрицы 8×8, образуемой парой независимых матриц 4×4, отвечающих противоположным ориентациям спина электронов:

$$\begin{pmatrix} U\langle n_{-\sigma}\rangle - E & -\gamma & -\rho\Delta & 0 \\ -\gamma & U\langle n_{-\sigma}\rangle - E & 0 & -\rho\Delta \\ -\rho\Delta & 0 & -E & 0 \\ 0 & -\rho\Delta & 0 & -E \end{pmatrix}, \quad \gamma = tZ\left(1 - \frac{a_0^2 l(l+1)}{2R^2}\right). \qquad (6.13)$$

При отсутствии внешнего магнитного эта матрица имеет одинаковый вид для обеих ориентаций спина, а все состояния электронов двукратно вырождены.

Непосредственное нахождение корней характеристического уравнения – определителя (6.13) – даёт следующие энергетические уровни электронов в оболочке:

$$E_{l,\sigma} = \frac{1}{2}\left(U\langle n_{-\sigma}\rangle \pm \gamma\right) \pm \frac{1}{2}\sqrt{\left(U\langle n_{-\sigma}\rangle \pm \gamma\right)^2 + 4(\rho\Delta)^2}, \qquad (6.14)$$

где знаки в скобках и знак между слагаемыми независимы друг от друга (всего имеется 4 значения энергии, с учётом спиновой переменной – 8). Орбитальное квантовое число l ограничено. Количество возможных состояний электрона для каждого значения l и заданного спина равно ($2l$+1), что в пределах от 0 до некоторого l_{max} обеспечивает реализацию $(l_{max}+1)^2$ квантовых состояний, при этом имеет место вырождение по азимутальному квантовому числу. Поскольку $l(l+1)$ – это квадрат момента импульса частицы L^2, энергетический спектр может быть записан как непрерывная функция:

$$\begin{aligned} E_\sigma(L) = \frac{1}{2}\left(U\langle n_{-\sigma}\rangle \pm tZ\left(1 - \frac{a_0^2 L^2}{2R^2}\right)\right) \pm \\ \pm \frac{1}{2}\sqrt{\left(U\langle n_{-\sigma}\rangle \pm tZ\left(1 - \frac{a_0^2 L^2}{2R^2}\right)\right)^2 + 4(\rho\Delta)^2}. \end{aligned} \qquad (6.15)$$

Оболочка формируется N атомами углерода, и содержит приблизительно $N/2$ элементарных ячеек, поэтому число возможных состояний электрона на каждой из двух подрешёток также равно $N/2$. Отсюда максимальное орбитальное квантовое число равно

$$l_{max} \approx \sqrt{\frac{N}{2}} - 1.$$

Число атомов в оболочке можно оценить из соотношения радиуса сферы и характерной длины связи в решётке. Удобно найти число атомов в каждой из треугольных подрешёток *A* и *B*, межатомное расстояние в которых составляет $3^{1/2}a_0$ (см. рис. 5.3). Полное число узлов – вдвое больше:

$$N \sim 2 \cdot \frac{4\pi R^2}{S_1} \sim \frac{32R^2}{3a_0^2}, \tag{6.16}$$

откуда

$$l_{max} \sim \sqrt{\frac{16}{3}\frac{R}{a_0}} - 1. \tag{6.17}$$

Для синтезируемых в экспериментах нанооболочек радиусом 2÷3 нм это даёт оценки $N \sim 9 \cdot 10^2 \div 2 \cdot 10^3$ и $l_{max} \sim 29 \div 45$. С увеличением размера оболочки оба параметра быстро возрастают.

Для получения численных результатов приняты приближённые значения $t \approx 3$ эВ и $\Delta = 5$ эВ [109, 308, 309]. На рис. 6.5 показаны спектры энергетических уровней, соответствующие различным значениям l, концентрации примесных ионов ρ и энергии кулоновского отталкивания U.

Тесно расположенные уровни фактически образуют четыре энергетические зоны, дискретность которых определяется сравнительно малым числом узлов решётки. При отсутствии примесных ионов и их низкой концентрации отдельные ветви спектра сливаются (рис. 6.5, *а*), а при высокой концентрации примесн (рис. 6.5, *б*) формируется запрещённая зона, ширина которой пропорциональна $\rho\Delta$ и составляет единицы эВ.

Структура ветвей энергетических спектров и ширина запрещённой зоны не изменяются при увеличении l_{max}, возрастает только плотность уровней. Кулоновское отталкивание t–U модели приводит к тому, что спектр становится асимметричным (рис. 6.5, *а*, *б*). В пренебрежении им структура спектра является полностью симметричной, а при отсутствии примеси (рис. 6.5, *в*) она качественно совпадает со спектром графена, реализуется аналог точки Дирака с близким к линейному законом дисперсии.

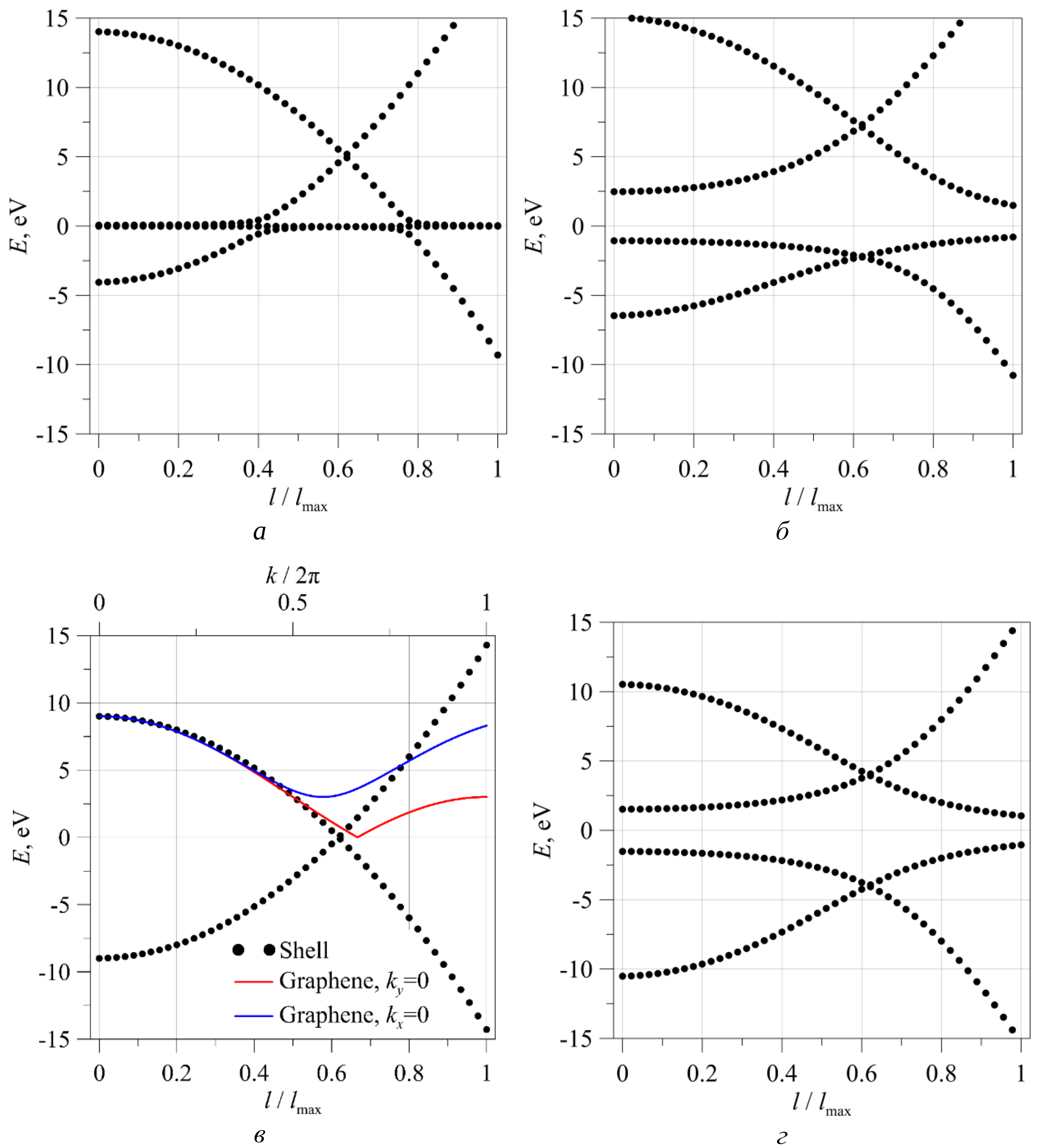


Рис. 6.5. Рассчитанные энергетические спектры для однослойной углеродной оболочки безразмерным радиусом 20 при значении кулоновского отталкивания U = 10 эВ и концентрации примесных ионов: *а* – ρ = 0.1, *б* – ρ = 0.8; для системы без кулоновского отталкивания при концентрации примеси: *в* – ρ = 0.0; *г* – ρ = 0.8 Орбитальное квантовое число нормировано на l_{max}, определяемое радиусом оболочки (для указанных параметров l_{max} = 45). На панели *в* показаны также дисперсионные соотношения для двух направлений в графене.

Присутствие на графике уровня энергии $E = 0$ эВ обусловлено вырождением матрицы (6.13) в пределе $\rho = 0$, $U = 0$. В реальности, при отсутствии примеси этот уровень наблюдаться не будет. В то же время, осаждение примесных ионов на поверхности углерода даже в малой концентрации приведёт к появлению тесной пары уровней вблизи значения $E = 0$ между основными энергетическими зонами. Рост ρ обеспечивает расщепление этого уровня на два сперва в окрестности точки Дирака, а затем и при других значениях l. Высокая концентрация примеси приводит к формированию запрещённой зоны (рис. 6.5, *г*), как и при учёте кулоновской энергии (рис. 6.5, *б*).

В пределе отсутствия примеси спектр (6.14) приобретает простой вид:

$$E_{l,\sigma} = \pm\gamma = \pm tZ\left(1 - \frac{a_0^2 l(l+1)}{2R^2}\right). \tag{6.18}$$

Отсюда может быть найдено положение аналога точки Дирака:

$$l_* = \frac{1}{2}\left[\sqrt{\frac{8R^2}{a_0^2} + 1} - 1\right] \approx \frac{\sqrt{2}R}{a_0} - \frac{1}{2} + \frac{\sqrt{2}}{16}\frac{a_0}{R} + \dots. \tag{6.19}$$

Видно, что оно задаётся только соотношением радиуса оболочки и межатомного расстояния.

Разложение спектра вблизи (6.19) является линейной функцией относительно изменения квантового числа:

$$E_{\sigma, l_* + \Delta l} \approx \pm tZ\,\frac{a_0^2}{R^2}\left(\frac{1}{2} + l_*\right)\Delta l. \tag{6.20}$$

Таким образом, в приближении сплошной среды энергетический спектр углеродного монослоя, замкнутого в сферическую оболочку, сохраняет основные фундаментальные особенности, характерные для графита и графена [308, 309].

6.2.2. Дипольные переходы

Полученные спектры позволяют найти разрешённые переходы электронов под влиянием внешних возмущений и вычислить соответствующие им частоты. Далее рассмотрены дипольные переходы в поле плоской электромагнитной волны.

Ввиду отсутствия постоянного внешнего магнитного поля в основном состоянии достаточно учесть только влияние на оболочку z-компоненты электрического поля волны:

$$\boldsymbol{\mathcal{E}}(r,t) = \mathcal{E}_0 \boldsymbol{e}_z \operatorname{Re}\left\{ e^{i(\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}-\omega t)} \right\}. \tag{6.21}$$

Матричные элементы переходов под влиянием такого поля в дипольном приближении равны [296]:

$$\left\langle \psi_f \middle| \hat{V} \middle| \psi_i \right\rangle = \frac{e\mathcal{E}_0}{2} \left\langle \psi_f \middle| z \middle| \psi_i \right\rangle, \tag{6.22}$$

где $z = \cos\vartheta$ – координата электрона относительно центра оболочки. Волновые функции электронов определяются сферическими гармониками (6.11), и условия их ортогональности задают обычное правило отбора для разрешённых переходов $\Delta l = \pm 1$.

Следуя этому результату, легко найти частоты разрешённых переходов и ожидаемые линии поглощения в спектре сферической углеродной оболочки. Они показаны на рис. 6.6 для различной концентрации примесных ионов. Наличие запрещённой зоны приводит к формированию двух широких полос поглощения (тесных групп частот разрешённых переходов). Положения наблюдаемых полос смещаются в ультрафиолетовую область спектра по мере увеличения концентрации примеси. В частности, на рис. 6.5, *б* это длины волн около 300 и 150 нм. Рост ширины запрещённой зоны может привести к формированию полосы ослабленного поглощения между двумя пиками вплоть до полной прозрачности (рис. 6.6, *в, г*).

Все показанные частоты отвечают осесимметричным волновым функциям электронов, что обусловлено структурой рассматриваемого возмущения (12) и отсутствием магнитного поля. Здесь, однако, не учитывается возможность запретов на переходы между состояниями различной симметрии.

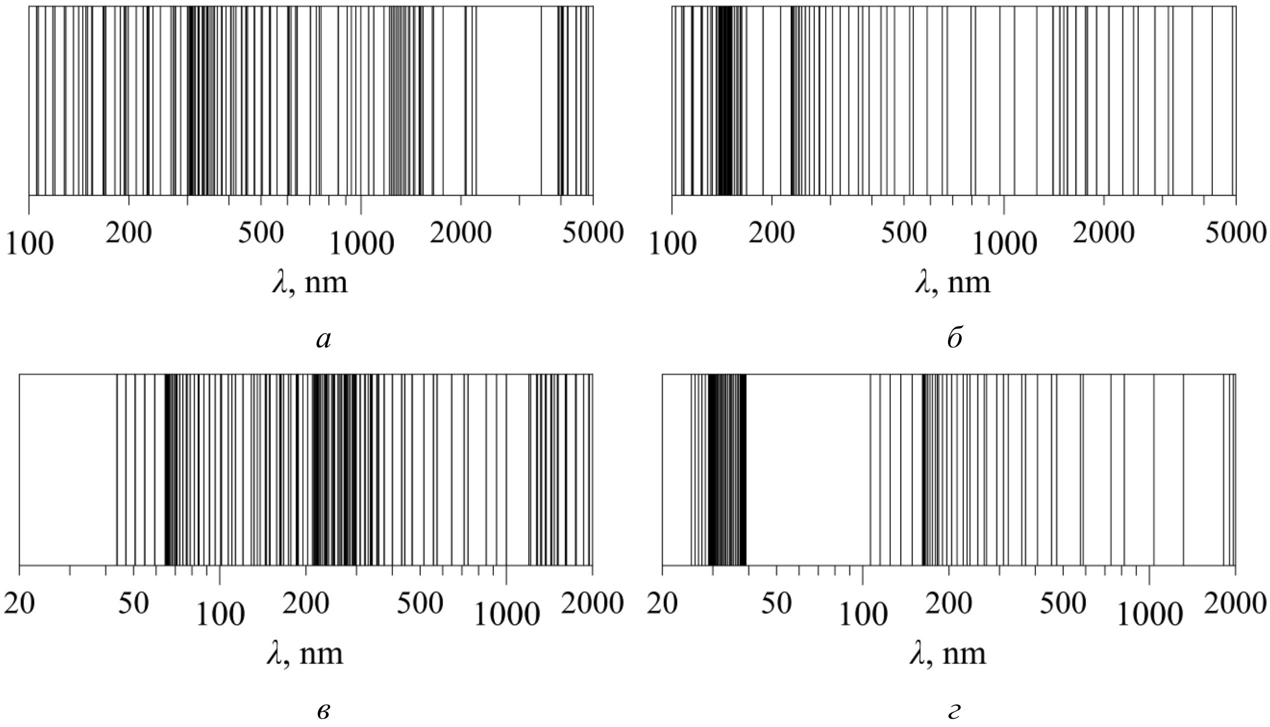
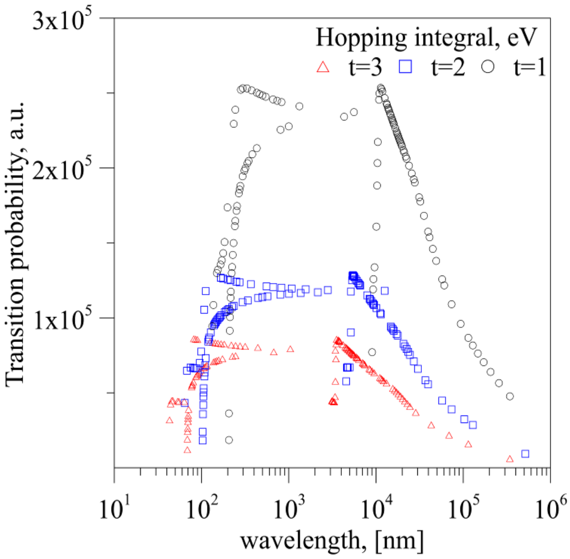


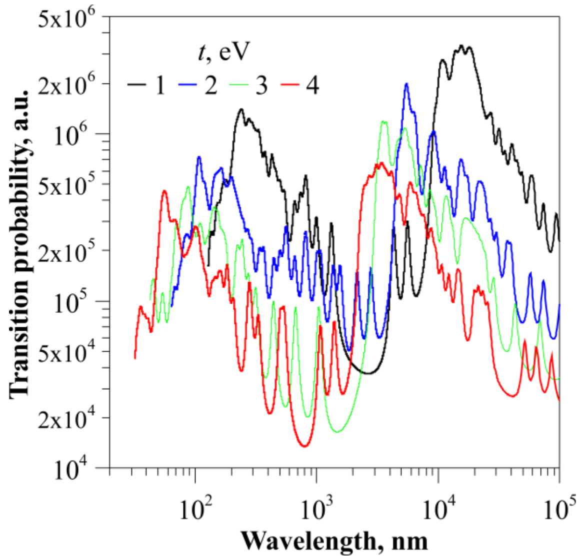
Рис. 6.6. Длины волн, соответствующие разрешённым по орбитальному квантовому числу переходам для однослойной углеродной оболочки безразмерным радиусом $R/a_0 = 20$, при значении кулоновского отталкивания $U = 10$ эВ и концентрации примесных ионов: *а* – $\rho = 0.1$; *б* – $\rho = 0.8$. Показан также пример реализации полосы прозрачности в области жёсткого ультрафиолетового излучения при высокой энергии перехода на примесный узел $\Delta = 20$ эВ: *в* – $\rho = 0.1$; *г* – $\rho = 0.8$

Полученные спектры энергетических уровней и частот переходов качественно отвечают известным теоретическим и экспериментальным результатам для фуллеренов типа C_{60}, C_{70}, у которых наблюдаются характерные полосы поглощения в ультрафиолетовой области [355–358].

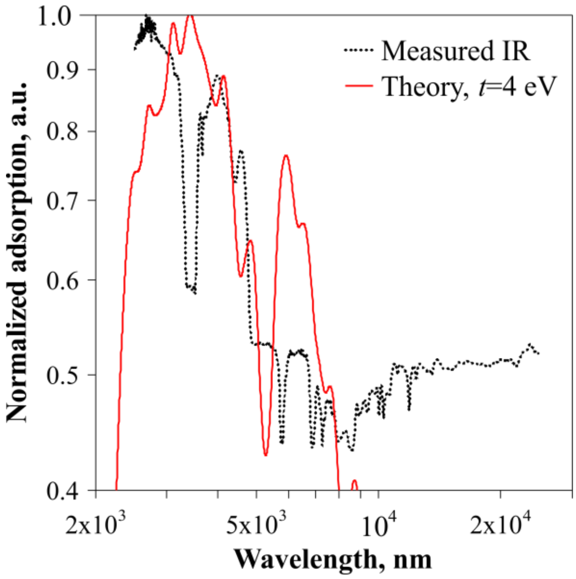
Непосредственный расчёт матричных элементов даёт возможность найти также и вероятности различных переходов [323]. Результирующая картина расположения пиков модельного спектра поглощения показана на рис. 6.7, *а*. Спектр поглощения вычислен для различных значений интеграла перескока *t* в основной углеродной решётке. Значение параметра кулоновского отталкивания не привело к видоизменению структуры спектра. На показанных иллюстрациях видно, что в спектре явно выделяются две полосы поглощения, локализованные в ближней ИК-области и на границе УФ и видимой областей.



а



б



в

Рис. 6.7. Спектры поглощения ансамбля углеродных нанооболочек: а – рассчитанные на основе модели Хаббарда для однослойной оболочки частоты и интенсивности при различных значениях интеграла перескока; б – то же, со сглаживанием лоренцевыми кривыми; в – сопоставление экспериментальных данных ИК-спектроскопии (сплошная линия) и расчёта (ИК-ветвь спектра) для t = 4 эВ

Расположение полосы поглощения в ультрафиолетовом участке на длинах волн около 100–300 нм близко к положению пика поглощения для графена [355–358]. В области ближнего ИК-излучения полоса является более узкой с выраженным пиком на длине волны около 2000 нм. Его расположение соответствует данным ИК-спектроскопии нанооболочек в стекле, выполненной Сосуновым А. В. (ПГНИУ, Пермь) (рис. 6.7, *в*). Для сопоставления с экспериментом была применена аппроксимация линий кривыми Лоренца с относительной полушириной 5 %.

6.2.3. Плотность электронных состояний

Приближённые расчёты плотности состояний выполнены численно по общей формуле:

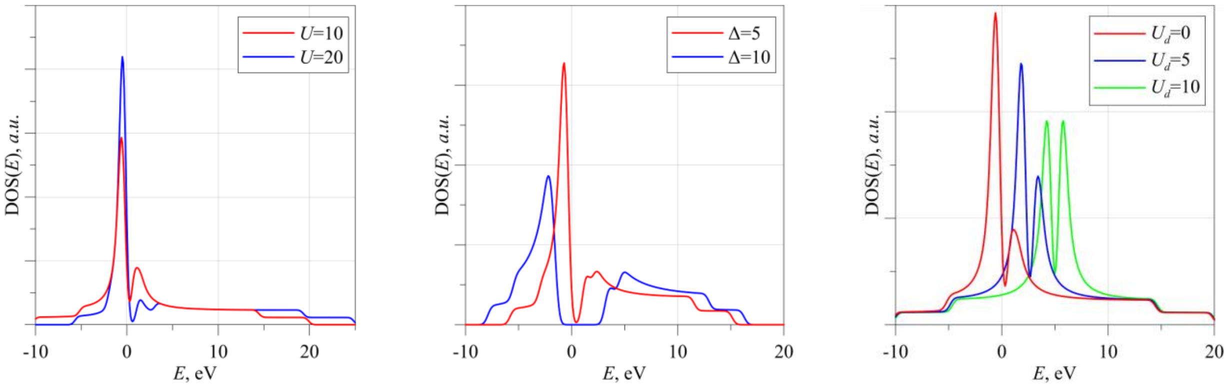
$$DOS(E) = \sum_{E_n} g(E_n)\delta(E - E_n), \tag{6.23}$$

где $g = 2(2l+1)$ – кратность вырождения состояний, с использованием гауссовой аппроксимации для дельта-функций:

$$\delta(x) \approx \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right), \tag{6.24}$$

при значении $\sigma = 0.3$. На рис. 6.8 приведены рассчитанные плотности состояний для различных комбинаций параметров системы.

Видно, что большинство состояний при наличии примесных ионов локализуется под нулевым уровнем энергии, тогда как их число в области положительных значений энергии относительно невелико. Увеличение интенсивности кулоновского отталкивания на узлах углеродной решётки приводит к усилению асимметрии плотности состояний (рис. 6.8, *а*). Интеграл перескока между решёткой и узлами примеси Δ определяет ширину запрещённой зоны – при его увеличении область, в которой состояния отсутствуют, существенно расширяется (рис. 6.8, *б*). Аналогичный результат даёт увеличение концентрации примеси, т.к. концентрация ρ и параметр Δ входят в гамильтониан (6.1) в произведении. Таким образом, в сферических оболочках также возможно достаточно эффективно контролировать ширину запрещённой зоны посредством варьирования концентрации примеси.



а *б* *в*

Рис. 6.8. Рассчитанные численно плотности состояний электронов в однослойной оболочке с примесями (ρ = 0.8) при различных значениях: *а* – кулоновской энергии U на узлах углеродной решётки; *б* – интеграла перехода между основной решёткой и примесными узлами; *в* – кулоновской энергии на узлах примеси U_d

Данный результат подтверждается с помощью измерения электропроводности в работе [254], где производилась функционализация углеродных сфер фтором с последующим контролем концентрации. Измерения, выполненные Сосуновым А. В. (ПГНИУ, Пермь) показали, что по мере увеличения доли фтора в элементном составе композита электропроводность экспоненциально падает (рис. 6.9). Полное сопротивление образца площадью 25 мм^2 увеличивается от 50 для чистого углерода до 950 Ом при концентрации фтора 0.5 по экспоненциальному закону. Для собственных полупроводников известная зависимость проводимости от ширины запрещённой зоны [27, 359]:

$$\sigma \propto \exp\left(-\frac{\Delta E}{2k_B T}\right), \tag{6.25}$$

Оценка в рамках приближения однослойной оболочки даёт для ширины запрещённой зоны выражение:

$$\Delta E = 2\sqrt{2}\rho\Delta. \tag{6.26}$$

Комбинируя данные выражения и аппроксимацию экспериментальных данных (см. рис. 6.9), можно оценить величину энергии перехода Δ между решёткой и атомами примеси как 0.09 эВ. Соответственно, для синтезированных образцов ширина запрещённой зоны, оцениваемая по (6.26) изменяется в пределах от 0 (без фтора) до 0.13 эВ (при концентрации фтора 0.50). Эти значения запрещённой зоны свойственны узкозонным полупроводникам типа InSb, PbSe, PbTe и SnTe [27].

С другой стороны, характерное значение ширины запрещённой зоны полностью фторированного однослойного графена, приводимое в литературе, составляет около 2–3 эВ [109–111, 360]. Поэтому можно предположить, что геометрия материала в совокупности с влиянием внутренних слоёв оболочки определяют уменьшение эффективной (измеряемой по зависимости электропроводности) ширины запрещённой зоны ансамбля нанооболочек.

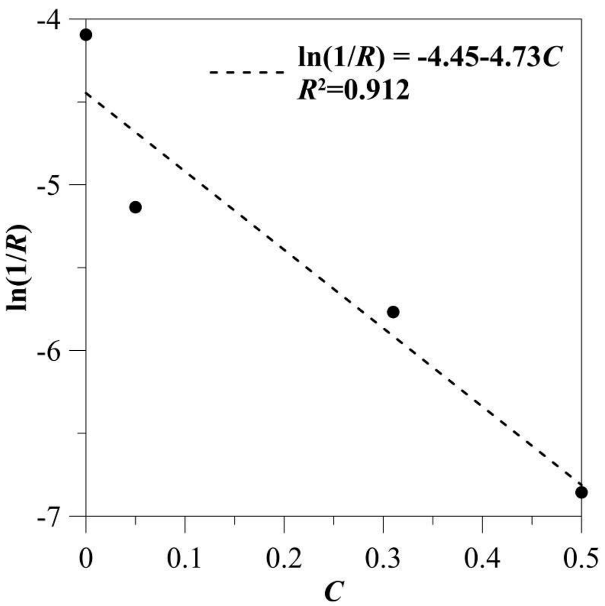


Рис. 6.9. Измеренная зависимость проводимости образцов функционализированных углеродных нанооболочек от концентрации атомов фтора при комнатной температуре. Приведена аппроксимирующая формула

6.2.4. Парамагнетизм Паули в ансамбле оболочек

Информация о плотности состояний позволяет рассчитать также равновесные макроскопические свойства материала. Для этого используются стандартные подходы статистической физики. Рассматривается ансамбль невзаимодействующих углеродных нанооболочек – например, в растворе или стекле.

Имеются два основных механизма, которые могут определять намагниченность системы пустотелых углеродных оболочек. Во-первых, это вклады полного орбитального момента волновых функций электронов в решётке. С учётом структуры волновых функций (6.11) наблюдаемая проекция орбитального момента оболочки на направление приложенного поля будет равна

$$\langle L_z \rangle = \sum_{l,m} m\left(|a_{lm}|^2 + |b_{lm}|^2 + |d_{lm}|^2 + |f_{lm}|^2\right). \tag{6.27}$$

Прямой расчёт собственных векторов показывает, что амплитуды волновых функций слабо зависят от величины интеграла перехода между углеродом и примесными атомами Δ – разложение вблизи нуля показывает, что амплитуды волновых функций как минимум квадратичны по этому параметру, и в первом приближении величина (6.27) оказывается равна нулю, поскольку магнитное квантовое число m изменяется от $-l$ до $+l$.

Поэтому существенным является только магнитный момент, обусловленный разностью населённостей двух зеемановских уровней энергии во внешнем поле – механизм Паули. В результате намагниченность электронной подсистемы M вычисляется как разность населённости состояний с противоположными спинами, аналогично теории парамагнетизма идеального ферми-газа [27–29]:

$$M = \frac{1}{2}\int dE\, f(E)\big(DOS(E-h) - DOS(E+h)\big), \quad f(E) = \frac{1}{\exp(\beta E)+1}, \tag{6.28}$$

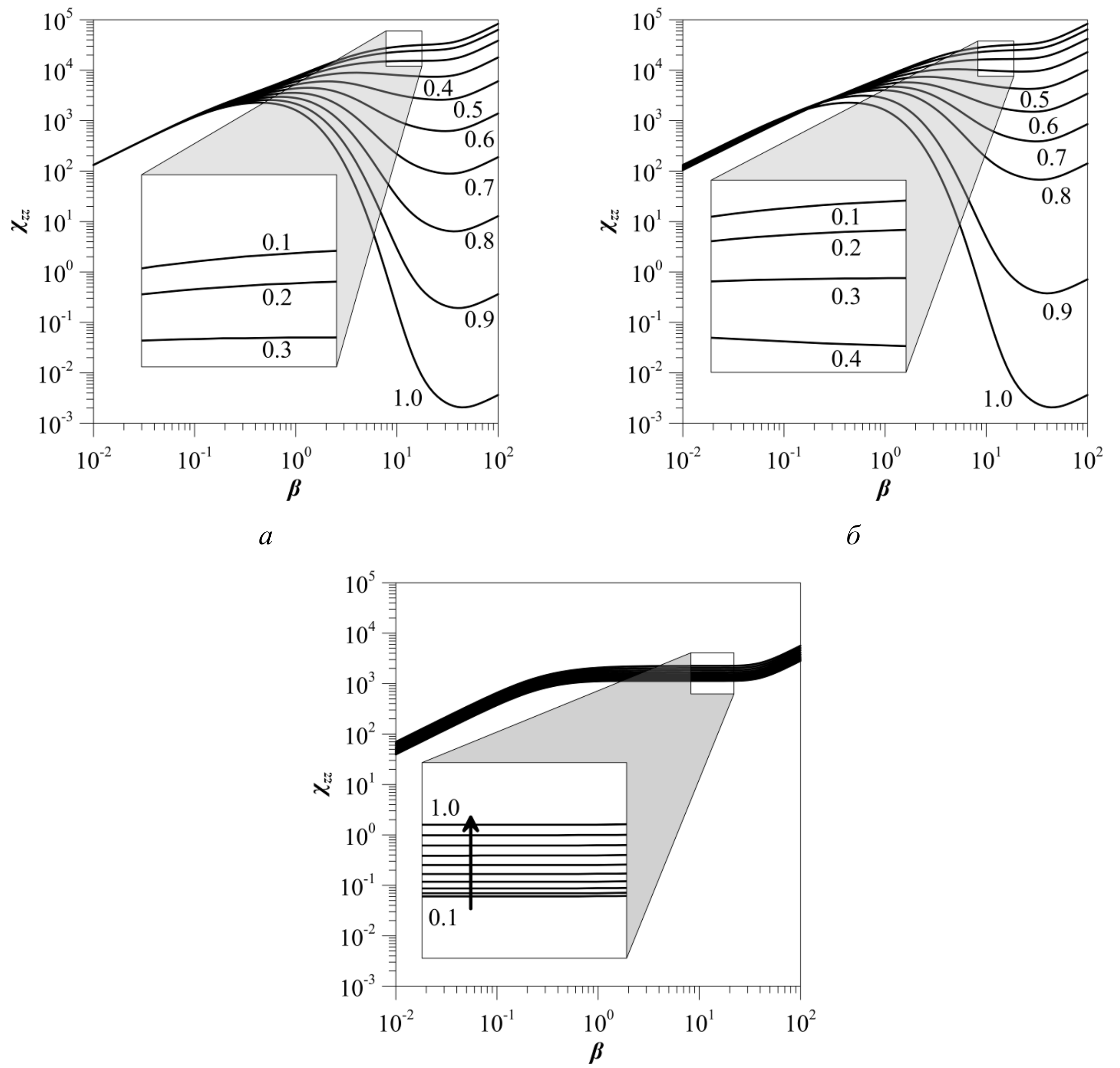
где h – энергия Зеемана, обусловленная присутствием внешнего магнитного поля, а f – функция распределения Ферми–Дирака. В выражении для намагниченности учтены две возможные ориентации электронных спинов. Равновесная магнитная восприимчивость χ_{zz} при нулевом внешнем магнитном поле даётся следующим выражением:

$$\chi_{zz} = \int dE \frac{df(E)}{dE} DOS(E). \qquad (6.29)$$

Вычисление обеих величин производится численно на основе найденной ранее приближённой функции плотности состояний (6.23). Интегрирование осуществляется простым методом левых прямоугольников. Шаг по энергии в расчётах равен 0.1 эВ, что обеспечивает около 500 интервалов интегрирования в пределах отрезка, на котором плотность состояний существенно отличается от нуля. Полученные температурные зависимости восприимчивости при ρ от 0 до 1 приведены на рис. 6.10.

Из представленных кривых видно, что система проявляет типичную картину парамагнетизма типа Паули в области высоких температур. С другой стороны, при низких температурах существенную роль начинает играть степень функционализации и величина кулоновского отталкивания в системе. Наиболее яркий эффект проявляется при малости последнего на примесных ионах. Рис. 6.10, *а, б* показывают, что по достижении степени функционализации 0.4 и выше восприимчивость в области низких температур резко уменьшается, что соответствует описанному в главе 3 спаду намагниченности димерного композита. Пары «атом решётки – атом примеси» формируют димеры, которые могут перейти в состояние с нулевым полным спином. Увеличение доли таких димеров в системе обусловливает наблюдаемый спад намагниченности.

При «включении» в модели кулоновского отталкивания на атомах примеси, располагающихся на поверхности углерода, наблюдаемое температурное поведение параметров материала кардинальным образом меняется. Намагниченность при низких температурах не спадает до нулевой, и в системе существует неполное насыщение, не отвечающее однородной ориентации всех спиновых моментов (рис. 6.10, *в*). При малой концентрации примеси низкотемпературная намагниченность принимает значение вблизи 1/2, а увеличение степени функционализации материала приводит к увеличению низкотемпературной намагниченности.



а *б* *в*

Рис. 6.10. Рассчитанные температурные зависимости равновесной продольной магнитной восприимчивости функционализированных углеродных сфер при различной степени функционализации и значениях кулоновского параметра модели Хаббарда для основной решётки и примесных узлов: *а* – U = 0 эВ, $\underline{U_d}$ = 0 эВ; *б* – U = 10 эВ, $\underline{U_d}$ = 0 эВ; *в* – U = 10 эВ, $\underline{U_d}$ = 10 эВ. Цифрами возле кривых обозначены значения относительной плотности примесных атомов ρ на поверхности углерода. Стрелка на панели (*в*) показывает направление роста ρ

Кроме того, наблюдаются два хорошо выраженных постоянных значения намагниченности в широких температурных интервалах, тогда как восприимчивость композита практически не зависит от концентрации примеси. Здесь объединение электронов в димеры уже не преобладает в силу высокой энергии отталкивания на примесных узлах, и поэтому состояния с нулевым спином реализуются со значительно меньшей вероятностью. Поведение намагниченности показывает, что в массиве оболочек при наличии кулоновского отталкивания электронов на примесных ионах реализуются две слабо связанные магнитные подсистемы, каждая из которых достигает насыщения независимо друг от друга.

6.2.5. Диамагнетизм углеродной наносферы

В различных работах по магнетизму двумерных углеродных материалов и композитов на их основе отмечается, что углерод в них в силу специфики своей электронной структуры, определяемой преимущественно sp^2-орбиталями, должен обладать выраженной диамагнитной восприимчивостью, и слабым парамагнетизмом [308, 317]. Это во многом связано особенностями структуры плотности состояний электронов на углеродной плоскости – для такой системы уровень Ферми в обычных условиях располагается вблизи минимума функции плотности, и парамагнитная восприимчивость, определяемая согласно (6.29), оказывается практически нулевой. Для рассматриваемых в настоящей работе оболочек величина диамагнитного момента благодаря их большому размеру может быть оценена на основе классической модели. Под действием магнитного поля электроны образуют семейство кольцевых токов различных радиусов. Полный наведённый магнитный момент оболочки определяется суммой проекций моментов отдельных токов на направление поля.

Диамагнитный момент углеродной оболочки может быть оценён на основе классической модели. Можно принять, что при наличии внешнего магнитного поля свободные электроны формируют семейство кольцевых токов различных радиусов, суммарный магнитных момент которых определяет наведённый диамагнитный момент всей структуры. Используя классическую теорию диамагнетизма [28, 304], удаётся получить следующую оценку величины диамагнитного момента оболочки:

$$\left\langle \mu \right\rangle = -\frac{e^2 H_0}{6mc^2}\sum_{j=1}^{N}\left\langle r_j^2 \right\rangle \approx -\frac{e^2 H_0}{6mc^2}\frac{\left\langle R \right\rangle^2}{2}N, \tag{6.30}$$

где m – масса электрона, c – скорость света, N – число валентных электронов в её составе (см. (6.16)), $\left\langle R \right\rangle$ – средний радиус оболочки, r_j – радиус кругового тока каждого отдельного электрона. В рассматриваемой углеродной структуре у каждого атома углерода имеется один неспаренный электрон, поэтому N может быть записано как отношение массы оболочки к массе атома углерода $N = m_{\text{shell}}/m_C$, что позволяет определить удельную диамагнитную восприимчивость в emu/g:

$$\chi_{dia} \approx -\frac{e^2}{12mc^2}\frac{\left\langle R \right\rangle^2}{m_C}. \tag{6.31}$$

Найденная зависимость восприимчивости от размера углеродной наноструктуры согласуется с известными результатами квантовохимических расчётов [304, 317].

Рассчитанные значения для среднего диаметра оболочки 2÷3 nm, отвечающего данным анализа микрофотографий композита [253], составляют $-(1.2\div2.7)\cdot10^{-5}$ emu/g. С учётом приближения идеальной сферической геометрии структуры и использования классической оценки, это также согласуется с найденным при обработке экспериментальных данных значением. Характерное значение паулиевской парамагнитной восприимчивости в размерных единицах составляет порядка $2.3\cdot10^{-22}$ emu на один атом углерода при концентрации примесных ионов 0.1, что соответствует около $1.1\cdot10^{-6}$ emu/g, и, таким образом, диамагнитный вклад электронной подсистемы является преобладающим.

6.3. Анализ результатов экспериментальных измерений намагниченности углеродных сфер

Измерение намагниченности композита, состоящего из углеродных наооболочек, в которых металлические включения удалены травлением в кислоте, выполнены Незнахиным Д. С. (УрФУ, Екатеринбург). Измерения проведены при температурах от 50 до 350 K, а также при 3 K, при напряженности магнитного поля от –70 кЭ до +70 кЭ.

Полученный образец включает как парамагнитную, так и диамагнитную фазу, что следует из характера поведения намагниченности при разных температурах (рис. 6.11). Это связано, предположительно, с неполным вытравливанием металлических ядер из углеродных оболочек, а также с возможностью присоединения кислорода [324]. В области низких температур в свойствах материала доминирует суперпарамагнитный вклад, отвечающий особенностям намагничивания металлических наночастиц. Насыщение выражено только при $T = 3$ K, и не достигается при более высоких температурах. При $T > 150$ K диамагнетизм углерода становится более существенным.

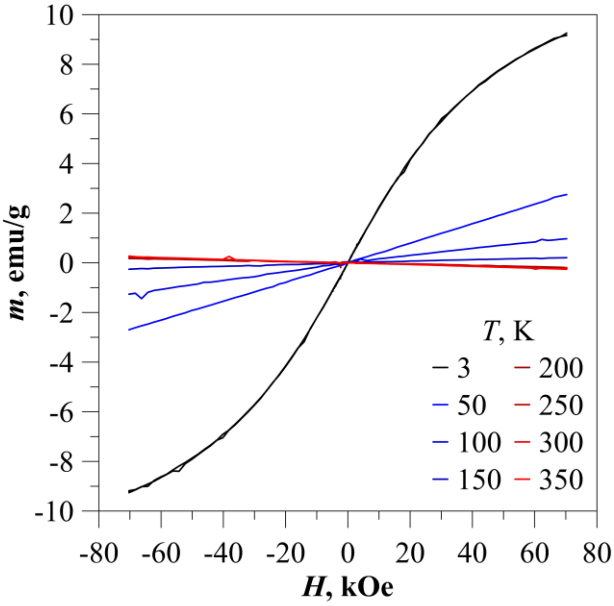


Рис. 6.11. Измеренные зависимости намагниченности смешанного углеродно-металлического образца от величины приложенного поля при постоянных температурах

В предположении, что диа- и парамагнитный вклады в восприимчивость независимы, можно записать её как

$$\chi_{tot} = \chi_{dia} + \frac{C}{T}, \tag{6.32}$$

Полная восприимчивость χ_{tot} рассчитывается по намагниченности, измеренной, и осредняется в интервале напряженностей поля от 30 до 70 кЭ (в экспериментах это даёт 21 точку). Большие значения поля выбираются для минимизации влияния тепловых флуктуаций намагниченности. Рассчитанные χ_{tot} приведены в таблице 6.1.

Выражение (6.32), взятое при двух различных температурах, образует систему уравнений для C и χ_{dia}. Расчёт был выполнен для каждой пары температур > 100 K (табл. 6.2), и даёт устойчивые результаты только для первых двух интервалов. Наблюдаемый разброс обусловлен ростом погрешности измерений малой намагниченности при высоких температурах. Полученные значения диа- и парамагнитного вклада в восприимчивость образца равны $\chi_{dia} = -1.9 \cdot 10^{-5}$ emu/g и $\chi_{par} = 3.4 \cdot 10^{-3}/T$ emu/g, соответственно. Они определяют температуру перехода из пара- в диамагнитное состояние, равную 172 K, что отвечает наблюдаемой в эксперименте смене знака полной восприимчивости.

Таблица 6.1. Рассчитанная зависимость полной восприимчивости смешанного образца углеродных наносфер от температуры

***T*, K**	100	150	200	250	300	350
$(\chi_{tot} \pm \Delta\chi) \cdot 10^6$, emu/g	14±1	3.1±0.2	–(2.6±0.2)	–(3.4±0.2)	–(3.5±0.1)	–(3.6±0.1)

Таблица 6.2. Рассчитанные параметры полной восприимчивости (6.32)

Temperature interval, K	**$\chi_{dia} \cdot 10^6$, emu/g**	**$C \cdot 10^6$, emu·K/g**
100; 150	–19.4	$3.37 \cdot 10^3$
150; 200	–19.5	$3.40 \cdot 10^3$
200; 250	–6.66	$8.23 \cdot 10^2$
250; 300	–4.19	$2.06 \cdot 10^2$
300; 350	–3.94	$1.29 \cdot 10^2$

6.4. Свойства многослойной углеродной оболочки

Представленная выше модель легко может быть адаптирована к системе, содержащей конечное произвольное число слоёв углерода. Это в большей мере отвечает реальным синтезируемым образцам, которые включают в среднем 5–10 атомарных слоёв (см. рис. 6.1). Базовый гамильтониан (6.1) расширяется следующим образом. Операторы рождения и уничтожения электронов в углеродной решётке рассматриваются теперь с привязкой к номеру слоя:

$$X_{j\sigma} \to X_{j\sigma}^{k} \tag{6.33}$$

примесь содержится только на внешней поверхности (слой k=1). Между слоями примеси возможны переходы электронов с интегралами перескока t_r^{AA}, t_r^{AB}, задающие вероятность попадания частицы на ту же или другую подрешётку углерода. Тогда гамильтониан слоя с номером k приобретает следующий вид:

$$\begin{aligned}\hat{H} = &-t\sum_{j,\boldsymbol{\delta},\sigma}\left(a_{j\sigma}^{k,\dagger}b_{j+\boldsymbol{\delta},\sigma}^{k} + b_{j\sigma}^{k,\dagger}a_{j-\boldsymbol{\delta},\sigma}^{k}\right) + U\sum_{j}\left(n_{j\uparrow}^{a^k}n_{j\downarrow}^{a^k} + n_{j\uparrow}^{b^k}n_{j\downarrow}^{b^k}\right) - \\ &- t_r^{AA}\sum_{j,\sigma}\left(a_{j\sigma}^{k,\dagger}a_{j+\boldsymbol{R},\sigma}^{k\pm1} + a_{j\sigma}^{k\pm1,\dagger}a_{j-\boldsymbol{R},\sigma}^{k} + \ldots\right) - \\ &- t_r^{AB}\sum_{j,\sigma}\left(a_{j\sigma}^{k,\dagger}b_{j+\boldsymbol{R},\sigma}^{k\pm1} + b_{j\sigma}^{k\pm1,\dagger}a_{j-\boldsymbol{R},\sigma}^{k} + \ldots\right).\end{aligned} \tag{6.34}$$

В результате модель многослойной оболочки содержит гамильтонианы невзаимодействующих между собой слоёв, а последняя пара слагаемых в каждом из них описывает возмущение основного состояния системы. Соответствующие матричные представления гамильтониана (6.34) и оператора возмущения, которые возникают при вычислении уровней энергии, будут такими:

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} \cdot & \cdot & -\Delta & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & -\Delta & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ -\Delta & \cdot & U & -\gamma_1 & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & -\Delta & -\gamma_1 & U & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & U & -\gamma_2 & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & -\gamma_2 & U & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & U & -\gamma_3 \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & -\gamma_3 & U \end{pmatrix}, \tag{6.35}$$

$$\hat{V} = -\begin{pmatrix} \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & t'_r & t_r & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & t_r & t'_r & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & t'_r & t_r & \cdot & \cdot & t'_r & t_r \\ \cdot & \cdot & t_r & t'_r & \cdot & \cdot & t_r & t'_r \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & t'_r & t_r & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & t_r & t'_r & \cdot & \cdot \end{pmatrix}, \tag{6.36}$$

где параметр γ зависит от радиуса слоя:

$$\gamma_k = tZ\left(1 - \frac{a_0^2 l(l+1)}{2R_k^2}\right). \tag{6.37}$$

Для краткости записи операторов точками внутри матриц обозначены нулевые компоненты. Матрицы операторов даны для примера трёхслойной оболочки. Увеличение числа слоёв приводит к добавлению строк снизу и столбцов справа, с аналогичным расположением ненулевых матричных элементов.

Уровни основного состояния в такой системе на внешнем слое (k = 1) и внутренних слоях ($k > 1$) отвечают энергии независимых однослойных оболочек:

$$E_{1,l,\sigma} = \frac{1}{2}\left(U \pm \gamma\right) \pm \frac{1}{2}\sqrt{\left(U \pm \gamma\right)^2 + 4\Delta^2}, \qquad E_{k,l,\sigma} = U \pm \gamma_k, \quad k > 1 \tag{6.38}$$

Вычисление поправок согласно стационарной теории возмущений в первом порядке даёт нулевой результат, а во втором – поправки пропорциональны квадрату интегралов перехода между слоями углерода:

$$E^{(1)} = 0, \qquad E^{(2)} \sim \frac{8\,|\,t_r^{AA} \pm t_r^{AB}\,|^2}{\gamma_{k\pm1} - \gamma_k}. \tag{6.39}$$

Конкретная структура поправок второго порядка не приводится в силу их громоздкости. В знаменателях присутствуют разности энергетических уровней основного состояния, и, т.к. параметр кулоновского отталкивания предполагается одинаковым для любых узлов в оболочке, здесь фигурируют только параметры γ_k (см. (6.37)).

Поправка к энергии является ненулевой только для случая равных значений квантового числа l, что даёт следующую оценку для знаменателя:

$$\gamma_{k+1} - \gamma_k = \frac{a_0^2 l(l+1)}{2}\left(\frac{1}{R_{k+1}^2} - \frac{1}{R_k^2}\right). \tag{6.40}$$

Если расстояние между слоями углерода δ много меньше их радиуса, то приведённое выражение может быть дополнительно упрощено:

$$\frac{1}{R_{k+1}^2} - \frac{1}{R_k^2} = \frac{R_k^2 - R_{k+1}^2}{R_k^2 R_{k+1}^2} = \frac{\delta(2R_k + \delta)}{R_k^2 (R_k + \delta)^2} \approx \frac{2\delta}{R_k^3}, \qquad \gamma_{k+1} - \gamma_k \approx \frac{a_0^2 l(l+1)}{R_k^3}\delta. \tag{6.41}$$

При уменьшении расстояния между слоями поправки стремятся к нулю. Данный результат, однако, неприменим для уровней, соответствующих $l = 0$. Наличие дополнительных слоёв в составе оболочки с учётом универсальности спектра (6.14) не приводит к каким-либо существенным изменениям в его структуре благодаря вкладам состояний с ненулевым орбитальным квантовым числом, и происходит только увеличение плотности энергетических уровней.

6.5. Заключение

Разработана и реализована квантово-механическая модель углеродного композита, состоящего из сферических одно- и многослойных оболочек. В рамках подхода, объединяющего модель Хаббарда и приближение сплошной среды, рассчитаны энергетические уровни и оптические спектры сферической оболочки, численно построены функции плотности состояний. На их основе проведено вычисление различных макроскопических свойств композита, прежде всего – равновесной намагниченности и продольной восприимчивости. Показано существенное влияние осаждения ионов примеси на наблюдаемые свойства материала, что обусловлено перераспределением плотности состояний и возникновением запрещённой зоны в спектре энергетических уровней.

Основные результаты и выводы

В ходе выполнения описанных в тексте настоящей диссертации работ автором проведён цикл теоретических и численных исследований магнитных свойств однородных материалов и композитов со слабой интенсивностью межчастичных взаимодействий. Их объединяющей стороной является анализ коллективных явлений, основанный на использовании подхода вторичного квантования, а также применение в ряде задач приближения сплошной среды для построения моделей волновой динамики рассмотренных систем.

Основные результаты проведённых исследований следующие:

1. С использованием спин-волнового подхода реализовано описание намагниченности дипольной системы вблизи насыщения в сильном внешнем поле. Спектр коллективных мод локализован вблизи ларморовской частоты, что определяет экспоненциальное убывание их вкладов в намагниченность и теплоёмкость при низких температурах. В рамках теории линейного отклика смоделирована динамика намагниченности системы под влиянием возмущений внешнего поля. На временах до $T_2 \sim 1/p_d$ наблюдается релаксация, обусловленная расфазировкой спиновых мод. На больших временах поперечная намагниченность в спин-волновом режиме затухает как $t^{-d/2}$, где d – размерность решётки. Найденная зависимость отвечает экспериментальным и теоретическим данным о спиновой динамике и спиновой диффузии в ансамблях NV-центров и одномерных спиновых цепочках с анизотропными взаимодействиями.
2. Подход на основе коллективных мод применён к уравнениям динамики отдельных магнитных моментов в концентрированной системе частиц с дипольным или РККИ-взаимодействием в пределе сплошной среды, и сформулированы уравнения эволюции суммарной намагниченности системы, описывающие спин-спиновую релаксацию и спиновую диффузию в сильном внешнем поле вблизи состояния насыщения без

введения эмпирических параметров. Существует единая иерархия динамических явлений: дипольное уширение соответствует процессам со временем T_2, формирование нелинейных волн на временах T_2^2, солитонов намагниченности – на масштабе T_2^3 и бóльших. Области устойчивости волн намагниченности ограничиваются вкладом несекулярных членов дипольного взаимодействия.

3. На базе приближения сплошной среды сформулирована динамическая модель динамики намагниченности двухкомпонентного материала, состоящего из парамагнитной решётки с равномерно внедрёнными в неё примесями с другим гиромагнитным отношением, с учётом дипольного взаимодействия атомов основной решётки между собой, с атомами примеси, и РККИ-взаимодействия примесных центров. Дисперсионные соотношения спиновых волн содержат две ветви, описывающие связанные колебания в подсистемах. Возможна реализация солитонов, устойчивых при положительном знаке взаимодействия ближайших атомов примеси, и значении угла между внешним полем и направлением движения, меньшим $\arccos\left(1/\sqrt{3}\right) \approx 57.3°$

4. В системе, образованной тесными магнитными димерами с РККИ-взаимодействием внутри пар частиц, со случайной величиной взаимодействия или размером димеров, возможна реализация немагнитной фазы, обусловленной переходом части димеров в микросостояния с нулевым полным спином. Это приводит к отклонению равновесной намагниченности системы ансамбля от ожидаемой для парамагнетика зависимости, заданной функцией Бриллюэна. Область существования немагнитного состояния расширяется при увеличении дисперсии распределения энергии взаимодействия в димерах или их размера. Аналогичное немагнитное состояние для концентрированной системы найдено численно для

модели Изинга с конкурирующими знаками обменного взаимодействия в первой и второй координационной сферах.

5. Реализация приближения сплошной среды к уравнениям эволюции операторов электронной плотности, полученных из модели Хаббарда для сферической углеродной оболочки с примесями, позволяет рассчитать энергетический спектр углеродной структуры. Найденный спектр оптического поглощения массива нанооболочек случайного размера согласуется с экспериментальными данными ИК-спектроскопии. В совокупности с измерениями проводимости он позволяет оценить параметры t–U модели, интегрально транспортные свойства системы. Получена оценка ширины запрещённой зоны, описан электронный пара- и диамагнетизм сферической оболочки, подтверждаемый экспериментальными измерениями намагниченности.
6. Аналитически и численно проведено осреднение пробных функций Абрагама, описывающих огибающие сигналов поперечной намагниченности элементов ансамбля спиновых кластеров случайного размера с заданной функцией распределения, продемонстрирован переход от осциллирующих сигналов суммарной намагниченности к монотонному спаду $M_x \sim (t/T_2)^{-1}$. Для ансамбля кластеров случайной структуры реализуется такая же зависимость.

Результаты работы демонстрируют существенный вклад коллективной спиновой динамики в равновесные и динамические характеристики одно- и многокомпонентных материалов с дипольным и РККИ-взаимодействием. Реализовано систематическое применение приближения сплошной среды к описанию коллективных явлений. Данный подход способствует построению достоверных и эффективно масштабируемых моделей для прогнозирования свойств магнитных и проводящих материалов, мезоскопических спиновых систем.

Список литературы

1. Мельников А. С., Миронов С. В., Самохвалов А. В., Буздин А. И. Сверхпроводящая спинтроника: современное состояние и перспективы // Успехи физических наук. – 2022. – Т. 192. – № 12. – С. 1339–1384.
2. Никитов С. А. и др. Магноника – новое направление спинтроники и спин-волновой электроники // Успехи физических наук. – 2019. – Т. 185. – С. 1099–1128.
3. Dietl T., Ohno H. Dilute ferromagnetic semiconductors: Physics and spintronic structures // Reviews of Modern Physics. – 2014. – V. 86. – P. 187–251.
4. Mott N. F. The resistance and thermoelectric properties of the transition metals // Proceedings of the Royal Society. – 1936. – V. 156. – P. 368–382.
5. Mott N. F. Electrons in transition metals // Advances in Physics. – 1964. – V. 13. – P. 325–422
6. Hubbard J. Electron correlations in narrow energy bands III. An improved solution // Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences. – 1964. – Т. 281. – №. 1386. – С. 401–419.
7. Fert A., Campbell I. A. Two-current conduction in Nickel // Physical Review Letters. – 1968. – V. 21. – P. 1190–1197.
8. Baibich M. N. et al. Giant magnetoresistance of (001) Fe/ (001) Cr magnetic superlattices // Physical Review Letters. – 1988. – V. 61. – N. 21. – P. 2472–2475.
9. Ramirez A. P. Colossal magnetoresistance // Journal of Physics: Condensed Matter. – 1997. – V. 9. – N. 39. – P. 8171–8199.
10. Abrikosov A. A. Quantum magnetoresistance // Physical Review B. – 1998. – V. 58. – P. 2788–2794.
11. Юсипова Ю. А., Попов А. И. Спиновые вентили в микроэлектронике. Обзор // Известия вузов. Электроника. – 2021. – Т. 26. – № 1. – С. 7–29.

12. Slonczewski J. C. Current-driven excitation of magnetic multilayers // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 1996. – V. 159. – P. L1–L7.
13. Ostrovskaya N. V., Skidanov V. A., Iusipova Iu. A. Bifurcations in the dynamical system for three-layered magnetic valve // Solid State Phenomena. – 2015. – V. 233–234. – P. 431–434.
14. Iusipova Iu. A. Analysis of the switching characteristics of MRAM cells based on materials with uniaxial anisotropy // Semiconductors. – 2018. – V. 52. – N. 15. – P. 1982–1988.
15. Ostrovskaya N. V., Iusipova Iu. A. Qualitative theory of dynamical systems for control of magnetic memory elements // Physics of Metals and Metallography. – 2019. – V. 120. – N. 13. – P. 1291–1298.
16. Zeng Z., Finocchio G., Jiang H. Spin transfer nano-oscillators // Nanoscale. – 2013. – V. 5. – N. 6. – P. 2219–2231.
17. Iacocca E., Kerman J. A. Analytical investigation of modulated spintorque oscillators in the framework of coupled differential equations with variable coefficients // Physical Review B. – 2012. – V. 85, 184420.
18. Suto H., Nagasawa T., Kudo K., Mizushima K., Sato R. Real-time measurement of temporal response of a spin-torque oscillator to magnetic pulses // Applied Physics Express. – 2011. – V. 4, 013003.
19. Tsymbal E. Y., Žutić I. Handbook of spin transport and magnetism. – Boca Raton: CRC Press, 2012. – 777 p.
20. Li G., Sun Sh., Wang Sh. X. Spin valve biosensors: Signal dependence on nanoparticle position // Journal of Applied Physics. – 2006. – V. 99, 08P107.
21. Saint-James D., Sarma D., Thomas E. J. Type II Superconductivity. – Oxford: Pergamon Press, 1969. – 294 p.
22. Aladyshkin A. Yu., Buzdin A. I., Fraerman A. A. et al. Domain-wall superconductivity in hybrid superconductor-ferromagnet structures // Physical Review B. – 2003. – V. 68, 184508.

23. Werner R., Aladyshkin A. Yu., Guénon S. et al. Domain-wall and reverse-domain superconducting states of a Pb thin-film bridge on a ferromagnetic $BaFe_{12}O_{19}$ single crystal // Physical Review B. – 2011. – V. 84, 020505(R).
24. Буздин А. И., Булаевский Л. Н., Панюков С. В. Осцилляции критического тока в зависимости от обменного поля и толщины ферромагнитного металла (F) в джозефсоновском контакте S-F-S // Письма в ЖЭТФ. 1982. Т. 35. С. 147–148.
25. Ryazanov V. V., Oboznov V. A., Rusanov A. Yu. et al. Coupling of two superconductors through a ferromagnet: evidence for a π junction // Physical Review Letters. – 2001. – V. 86. – P. 2427–2430.
26. Kontos T., Aprili M., Lesueur J. et al. Inhomogeneous superconductivity induced in a ferromagnet by proximity effect // Physical Review Letters. – 2001. – V. 86. – P. 304–307.
27. Киттель Ч. Квантовая теория твердых тел. – М.: Наука, 1967. – 491 с.
28. Вонсовский С. В. Магнетизм. – М.: Наука. 1971. – 1032 с.
29. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Теоретическая физика. Т. X / Лифшиц Е. М., Питаевский Л. П. Статистическая физика. Ч. 2. Теория конденсированного состояния. – М.: Физматлит, 2004. – 496 с.
30. Ахиезер А. И., Барьяхтар В. Г., Пелетминский С. В. – Спиновые волны. М: Наука. 1967. – 368 с
31. Тябликов С. В. Методы квантовой теории магнетизма. – М.: Наука, 1975. – 527 с.
32. Prabhakar A., Stancil D. D. Spin waves: Theory and applications. – New York: Springer. 2009. – 348 p.
33. White R. M. Quantum theory of magnetism: Magnetic Properties of Materials. – Berlin: Springer, 2007. – 362 p.
34. Брандт Н. Б., Кульбачинский В. А. Квазичастицы в физике конденсированного состояния. – М.: Физматлит, 2005. – 632 с.

35. Cherepanov V., Kolokolov I, L'vov V. The saga of YIG: spectra, thermodynamics, interaction and relaxation of magnons in a complex magnet // Physics Reports. – 1993. – V. 229 (3). – P. 84–144.
36. Kajiwara Y., Harii K., Takahashi S. et al. Transmission of electrical signals by spin-wave interconversion in a magnetic insulator // Nature. – 2010. – V. 464 (7286). – P. 262–266.
37. Sandweg C. W., Kajiwara Y., Chumak A. V. et al. Spin pumping by parametrically excited exchange magnons // Physical Review Letters. – 2011. – V. 106, 216601.
38. Suhl H. The theory of ferromagnetic resonance at high signal powers // Journal of Physics and Chemistry of Solids. – 1957. – V. 1. – N 4. – P. 209–227.
39. Khitun A., Bao M., Wang K. L. Magnonic logic circuits // Journal of Physics D. – 2010. – V. 43, 264005.
40. Kostylev M. P., Serga A. A., Schneider T. et al. Spinwave logical gates // Applied Physics Letters. – 2005. – V. 87, 153501.
41. Rado G. T., Vittoria C., Ferrari J. M., Remeika J. P. Linear electric field shift of a ferromagnetic resonance: Lithium ferrite // Physical Review Letters. – 1978. – V. 41. – N. 18. – P. 1253–1255.
42. Katsura H., Nagaosa N., Balatsky A. V. Spin current and magnetoelectric effect in noncollinear magnets // Physical Review Letters. – 2005. – V. 95, 057205
43. Arima T. Ferroelectricity induced by proper-screw type magnetic order // Journal of the Physical Society of Japan. – 2007. – V. 76. – N. 7, 073702.
44. Banerjee N., Smiet C. B., Smits R. G. J. et al. Evidence for spin selectivity of triplet pairs in superconducting spin valves // Nature Communications. – 2014. – V. 5, 3048.
45. Jara A. J., Safranski Ch., Krivorotov I. N. et al. Angular dependence of superconductivity in superconductor/spin-valve heterostructures // Physical Review B. – 2014. – V. 89, 184502.

46. Rovillain P., de Sousa R., Gallais Y. et al. Electric-field control of spin waves at room temperature in multiferroic $BiFeO_3$ // Nature Materials. – 2010. – V. 9. – N. 12. – P. 975–979.
47. Baettig P., Oguchi T. Why are garnets not ferroelectric? A theoretical investigation of $Y_3Fe_5O_{12}$ // Chemistry of Materials. – 2008. – V. 20. – N. 24. – P. 7545–7550.
48. Liu T., Vignale G. Electric control of spin currents and spin-wave logic // Physical Review Letters. – 2011. – V. 106, 247203.
49. Flokstra M. G., Cunningham T. C., Kim J. et al. Controlled suppression of superconductivity by the generation of polarized Cooper pairs in spin-valve structures // Physical Review B. – 2015. – V. 91, 060501(R).
50. Eschrig M., Löfwander T. Triplet supercurrents in clean and disordered half-metallic ferromagnets // Nature Physics. – 2008. – V. 4. – P. 138–143.
51. Klose C., Khaire T. S., Wang Y. et al. Optimization of spin-triplet supercurrent in ferromagnetic Josephson junctions // Physical Review Letters. – 2012. – V. 108, 127002.
52. Houzet M., Buzdin A. I. Long range triplet Josephson effect through a ferromagnetic trilayer // Physical Review B. – 2007. – V. 76, 060504.
53. Silaev M. A. Possibility of a long-range proximity effect in a ferromagnetic nanoparticle // Physical Review B. – 2009. – V. 79, 184505.
54. Robinson J. W. A., Chiodi F., Egilmez F. et al. Supercurrent enhancement in Bloch domain walls // Scientific Reports. – 2012. – V. 2, 699.
55. Fominov Ya. V., Volkov A. F., Efetov K. B. Josephson effect due to the long-range odd-frequency triplet superconductivity in SFS junctions with Néel domain walls // Physical Review B. – 2007. – V. 75, 104509.
56. Di Bernardo A., Diesch S., Gu. Y. et al. Signature of magnetic-dependent gapless odd frequency states at superconductor/ferromagnet interfaces // Nature Communications. – 2015. – V. 6, 8053.
57. Косевич А. М., Иванов Б. А., Ковалев А. С. Нелинейная локализованная волна намагниченности ферромагнетика как связанное состояние

большого числа магнонов // Письма в ЖЭТФ. – 1977. – Т. 25. – № 11. – С. 516–520.

58. Барьяхтар И. В., Иванов Б. А. Нелинейные волны намагниченности антиферромагнетиков // Физика низких температур. – 1979. – Т. 5. – № 7. – С. 759–770.

59. Изюмов Ю. А. Солитоны в квазиодномерных магнетиках и их исследование с помощью рассеяния нейтронов // Успехи физических наук. – 1988. – Т. 155. – С. 553–592.

60. Dmitriev D. V., Krivnov V. Ya. Magnetic solitons in a frustrated ferromagnetic spin chain // Physical Review B. – 2010. – V. 81, 054408.

61. Potenza A., Marrows C. H. Superconductor-ferromagnet CuNi⁄Nb⁄CuNi trilayers as superconducting spin-valve core structures // Physical Review B. – 2005. – V. 71, 180503(R).

62. Leksin P. V., Garif'yanov N. N., Garifullin I. A. et al. Evidence for triplet superconductivity in a superconductor-ferromagnet spin valve // Physical Review Letters. – 2012. – V. 109, 057005.

63. Буздин А. И., Куприянов М. Ю. Критическая температура сверхрешетки ферромагнетик-сверхпроводник // Письма в ЖЭТФ. – 1990. – Т. 52. – С. 1089–1091.

64. Kontos T., Aprili M., Lesueur J. et al. Superconducting proximity effect at the paramagnetic-ferromagnetic transition // Physical Review Letters. – 2004. – V. 93, 137001.

65. Robinson J. W. A., Piano S., Burnell G. et al. Critical current oscillations in strong ferromagnetic π junctions // Physical Review Letters. – 2006. – V. 97, 177003.

66. Golubov A. A., Kupriyanov M. Y., Il'ichev E. The current-phase relation in Josephson junctions // Reviews of Modern Physics. – 2004. – V. 76. – P. 411–469.

67. Singh A., Voltan S., Lahabi K. et al. Colossal proximity effect in a superconducting triplet spin valve based on the half-metallic ferromagnet CrO_2 // Physical Review X. – 2015. – V. 5, 021019.
68. Srivastava A., Olde Olthof L. A. B., Di Bernardo A. et al. Magnetization control and transfer of spin-polarized Cooper pairs into a half-metal manganite // Physical Review Applied. – 2017. – V. 8, 044008.
69. Kamashev A. A., Validov A. A., Schumann J. et al. Increasing the performance of a superconducting spin valve using a Heusler alloy // Beilstein Journal of Nanotechnology. – 2018. – V. 9. – P. 1764–1769.
70. Kamashev A. A., Garif'yanov N. N., Validov A. A. et al. Superconducting switching due to a triplet component in the $Pb/Cu/Ni/Cu/Co_2Cr_{1-x}Fe_xAl_y$ spin-valve structure // Beilstein Journal of Nanotechnology. – 2019. – V. 10. – P. 1458–1463.
71. de Groot R. A., Mueller F. M., van Engen P. G. et al. New class of materials: half-metallic ferromagnets // Physical Review Letters. – 1983. – V. 50. – P. 2024–2027.
72. Pickett W. E., Moodera J. Half metallic magnetic // Physics Today. – 2001. – V. 54. – N. 5. – P. 39–45.
73. Schefer J., Boehm M., Roessli B. et al. Soliton lattice in copper metaborate, CuB_2O_4, in the presence of an external magnetic field // Applied Physics A. – 2002. – V. 74. – P. s1740–s1742.
74. Galkina E. G., Galkin A. Yu., Ivanov B. A., Nori F. Magnetic vortex as a ground state for micron-scale antiferromagnetic samples // Physical Review B. – 2010. – V. 81, 184413.
75. Беннер Х., Калиникос Б. А., Ковшиков Н. Г., Костылев М. П. Наблюдение темных солитонов огибающей спиновых волн в ферромагнитных пленках // Письма в ЖЭТФ. – 2000. – Т. 72. – № 4. – С. 306–311.
76. Vaz C. A. F., Bland J. A. C., Lauhoff G. Magnetism in ultrathin film structures // Reports of Progress in Physics. – 2008. – V. 71, 056501.

77. Binasch G., Grunberg P., Saurenbach F, Zinn W. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange // Physical Review B. – 1989. – V. 39. – P. 4828(R)–4830(R).
78. Nielsen J. W. Magnetic bubble materials // Annual Review of Material Science. – 1979. – V. 9. – P. 87–121.
79. Parkin S. S. P., Kaiser C., Panchula A. et al. Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers // Nature Material. – 2004. – V. 3. – P. 862–867.
80. Prinz G. A. Magnetoelectronics // Science. – 1998. – V. 282. – P. 1660–1663.
81. Tserkovnyak Y., Brataas A., Bauer G. E. W. et al. Nonlocal magnetization dynamics in ferromagnetic heterostructure // Reviews of Modern Physics. – 2005. – V. 77, 1375.
82. Berger L. Low-field magnetoresistance and domain drag in ferromagnets // Journal of Applied Physics. – 1978. – V. 49. – P. 2156–2161.
83. Marrows C. H. Spin-polarised currents and magnetic domain walls // Advances in Physics. – 2005. – V. 54. – P. 585–713.
84. Sun J. Z. Spin angular momentum transfer in current-perpendicular nanomagnetic junctions // IBM Journal of Research and Development. – 2006. – V. 50. – P. 81–100.
85. Salhi E., Berger L. Current-induced displacements of Bloch walls in Ni-Fe films of thickness 120–740 nm // Journal of Applied Physics. – 1994. – V. 76. – P. 4787–4792.
86. Wegrowe J. E., Kelly D., Jaccard Y. et al. Current-induced magnetization reversal in magnetic nanowires // Europhysics Letters. – 1999. – V. 45 – P. 626–632.
87. Myers E. B., Ralph D. C., Katine J. A. et al. Current-induced switching of domains in magnetic multilayer devices // Science. – 1999. – V. 285. – P. 867–870.

88. Gradmann U. Ferromagnetism near surfaces and in thin films // Applied Physics. – 1974. – V. 3. – P. 161–178.
89. Egelhoff W. F. Jr., Chen P. J., Powell C. J. et al. Oxygen as a surfactant in the growth of giant magnetoresistance spin valves // Journal of Applied Physics. – 1997. – V. 82. – P. 6142–6151.
90. Ruigrok J. J. M., Coehoorn R., Cumpson S. R. et al. Disk recording beyond 100 Gb/in.^{2}: Hybrid recording? // Journal of Applied Physics. – 2000. – V. 87. – P. 5398–5403.
91. Fert A., Jaffres H. Conditions for efficient spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor // Physical Review B. – 2001. – V. 64, 184420.
92. Plummer E. W., Ismail, Matzdorf R. et al. Surfaces: a playground for physics with broken symmetry in reduced dimensionality // Surface Science. – 2002. – V. 500. – N. 1–3. – P. 1–27.
93. Сликтер Ч. Основы теории магнитного резонанса. – М.: Мир, 1981. – 448 с.
94. Abragam A. The principles of nuclear magnetism. – Oxford: Clarendon Press, 1961. – 599 p.
95. Pake G. E. Nuclear resonance absorption in hydrated crystals: fine structure of the proton line // Journal of Chemical Physics. – 1948. – V. 16. – P. 327–336.
96. Фаррар Т., Беккер Э. Импульсная и Фурье-спектроскопия ЯМР. – М.: Мир, 1973. – 166 с.
97. Дероум Э. Современные методы ЯМР для химических исследований. – М.: Мир, 1992. – 403 с.
98. Гиоргадзе Н. П., Хомерики Р. Р. Слабонелинейные волны намагниченности в ядерных спиновых системах с диполь-дипольным взаимодействием // Физика твердого тела. – 1995. – Т. 37. – № 4. – С. 929–935.

99. Buyers W. J. L. et al. Theory of spin waves in disordered antiferromagnets. I. Application to (Mn, Co)F_2 and K(Mn, Co)F_3 // Journal of Physics C. – 1972. – V. 5. – P. 2611–2628.

100. Buyers W. J. L. et al Theory of spin waves in disordered antiferromagnets. II. The dilute antiferromagnet (Mn, Zn)F_2 // Journal of Physics C. – 1973. – V. 6. – P. 1933–1952.

101. Turek I., Kudrnovský J., Drchal V. Coherence and stiffness of spin waves in diluted ferromagnets // Physical Review B. – 2016. – V. 94, 174447.

102. Costa Fihlo R. N., Gottam M. G., Farias G. A. Microscopic theory of dipole-exchange spin waves in ferromagnetic films: Linear and nonlinear processes // Physical Review B. – 2000. – V. 62, 6545.

103. Meloche E., Mercer J. I., Whitehead J. P. et al. Dipole-exchange spin waves in magnetic thin films at zero and finite temperature: Theory and simulations // Physical Review B. – 2011. – V. 83, 174425.

104. Wessler Ch., Roessli B., Kramer K. W. et al. Dipolar spin-waves and tunable band gap at the Dirac points in the 2D magnet $ErBr_3$ // Communications Physics. – 2022. – V. 5, 185.

105. Schoop L. Hirschberger M., Tao J. et al. Paramagnetic to ferromagnetic phase transition in lightly Fe-doped Cr_2B // Physical Review B. – 2014. – V. 89, 224417.

106. Sarkar B. J., Bandyopadhyay A., Mandal J. et al. Paramagnetic to ferromagnetic phase transition of Co doped Gd_2O_3 prepared by chemical route // Journal of Alloys and Compounds. – 2016. – V. 656, P. 339–346.

107. Hu Zh., Zhao Yi., Zou W. et al. Doping of graphene films: open the way to applications in electronics and optoelectronics // Advanced Functional Materials. – 2022. – V. 32, 2203179.

108. Tung J. C., Wang Y. K., Guo G. Y. Magnetic anisotropy and spin-spiral wave in V, Cr and Mn atomic chains on Cu(001) surface: first principles calculations // Journal of Physics D. – 2011. – V. 44, 205003.
109. Aoki H., Dresselhaus M. S. Physics of Graphene. – Cham: Springer, 2014. – 350 p.
110. Kogan E. RKKY interaction in gapped or doped graphene // Graphene. – 2013. – V. 2. – N. 1. – P. 8–12.
111. Krainov I. V. et al. Indirect exchange interaction between magnetic adatoms in graphene // Physical Review B. – 2015. – V. 92, 155432.
112. Глазков В. Н. Магнитный резонанс в низкотемпературных парамагнетиках // Успехи физических наук. – 2024. – Т. 194. – С. 1320–1325.
113. Giorgadze N., Khomeriki R. Dipolar magnetic envelope solitons // Journal of Low Temperature Physics. – 1999. – V. 116. – P. 381–392.
114. Giorgadze N., Khomeriki R. Interaction of envelope solitons in yttrium iron garnet films // Physical Review B. – 1999. – V. 60. – N. 2. – P. 1247–1251.
115. Feldman E. B., Khitrin A. K. NMR at high spin polarization: a spin-wave approach // Physics Letters A. – 1991. – V. 153. – N. 1. – P. 60–62.
116. Фельдман Э. Б., Хитрин А. К. Спин-волновая теория ЯМР в твердых телах при низких температурах // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 1990. – Т. 98. – № 3. – С. 967–977.
117. Jacquinot J. F., Weckenbach W. T., Chapellier M. et al. Nuclear ferromagnetics // Comptes Rendus Hebdomadaires des Seances de l'Academie des Sciences. Serie B. – 1974. – Т. 278. – №. 3. – С. 93–96.
118. Ehnholm G. J., Ekström J. P., Jacquinot J. F. et al. NMR studies on nuclear ordering in metallic copper below 1 μK // Journal of Low Temperature Physics. – 1980. – V. **39**. – P. 417–450.
119. Показаньев В. Г., Скроцкий Г. В., Якуб Л. И. Дипольное магнитное упорядочение в ядерных спин-системах // Успехи физических наук. – 1975. – Т. 116. – № 3. – С. 485–515.

120. Альтшулер С. А., Кочелаев Б. И., Леушин А. М. Парамагнитное поглощение звука // Успехи физических наук. – 1961. – Т. 75. – № 3. – С. 459–499.
121. Кочелаев Б. И. Распространение флуктуаций намагниченности в твердом парамагнетике / В сб.: Ривкинд А. И. (ред.) Парамагнитный резонанс 1944–1969. М.: Наука, 1979. С. 229–234.
122. Андриенко А. В., Ожогин В. И., Сафонов В. Л. и др. Исследования ядерных спиновых волн // Успехи физических наук. – 1991. – Т. 161. – № 10. – С. 1–35.
123. Куркин М. И., Райдугин Ю. Г., Танкеев А. П. Влияние ядерных спиновых волн на насыщение ЯМР // Физика твёрдого тела. – 1987. – Т. 29. – Вып. 2. – С. 503–508.
124. **Циберкин К. Б. Нелинейные волны и солитоны намагниченности в парамагнетике с дипольным взаимодействием // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2018. – Т. 154. – № 6 (12). – С. 1151–1159.**
125. Найфэ А. Х. Методы возмущений. – М.: Мир, 1976. – 456 с.
126. Gyongyosi L., Imre S. A survey on quantum computing technology // Computer Science Review. – 2019. – V. 31. – P. 51–71.
127. Cory D. G. et al. NMR based quantum information processing: Achievements and prospects // Fortschritte der Physik: Progress of Physics. – 2000. – V. 48. – N. 9–11. – P. 875–907.
128. Алдошин С. М., и др. На пути к созданию материалов для квантовых компьютеров // Успехи химии. – 2012. – Т. 81. – №. 2. – С. 91–104.
129. Валиев К. А. Квантовые компьютеры и квантовые вычисления // Успехи физических наук. – 2005. – Т. 175. – №. 1. – С. 3–39.
130. Burkard G., Engel H. A., Loss D. Spintronics and quantum dots for quantum computing and quantum communication // Fortschritte der Physik: Progress of Physics. – 2000. – V. 48. – N. 9–11. – P. 965–986.

131. Cerletti V., Coish W. A., Gywat O. et al. Recipes for spin-based quantum computing // Nanotechnology. – 2005. – V. 16. – N. 4, R27.
132. Pulizzi F. Spintronics // Nature Materials. – 2012. – V. 11. – N. 5. – P. 367.
133. Engel H. A., Recher P., Loss D. Electron spins in quantum dots for spintronics and quantum computation // Solid State Communications. – 2001. – V. 119. – N. 4–5. – P. 229–236.
134. Mehring M. Concepts of spin quantum computing // Applied Magnetic Resonance. – 1999. – V. 17. – N. 2–3. – P. 141–172.
135. Kloeffel C., Loss D. Prospects for spin-based quantum computing in quantum dots // Annual Review of Condensed Matter Physics. – 2013. – V. 4. – N. 1. – P. 51–81.
136. Torrey H. C. Bloch equations with diffusion terms // Physical Review. – 1956. – V. 104. – N. 3. – P. 563–565.
137. Atxitia U., Hinzke D., Nowak U. Fundamentals and applications of the Landau–Lifshitz–Bloch equation // Journal of Physics D. – 2016. – V. 50. – N. 3, 033003.
138. Lakshmanan M. The fascinating world of the Landau–Lifshitz–Gilbert equation: an overview // Philosophical Transactions of the Royal Society A. – 2011. – V. 369. – N. 1939. – P. 1280–1300.
139. Henner V. K., Klots A., Belozerova T. Simulation of Pake doublet with classical spins and correspondence between the quantum and classical approaches // European Physical Journal B. – 2016. – V. 89, 264.
140. Elsayed T. A., Fine B. V. Effectiveness of classical spin simulation for describing NMR relaxation of quantum spins // Physical Review Letters. – 2015. – V. 91, 094424
141. Fine B. V. Long-time behavior of spin echo // Physical Review Letters. – 2005. – V. 94, 247601.
142. Kharebov P. V., Henner V. K., Yukalov V. I. Optimal conditions for magnetization reversal of nanocluster assemblies with random properties // Journal of Applied Physics. – 2013. – V. 113, 043902.

143. Belozerova T. S., Henner V. K., Yukalov V. I. Computer simulation of coherent effects in polarized spin systems // Computer Physics Communications. – 1992. – V. 73. – N. 1–3. – P. 151–160.
144. Lundin A. A., Zobov V. E. Simulation of the nuclear magnetic system of a crystal by the system of classical magnetic moments // Journal of Magnetic Resonance. – 1977. – V. 26. – N. 2. – P. 229–235.
145. Starkov G. A., Fine B. V. Hybrid quantum-classical method for simulating high-temperature dynamics of nuclear spins in solids // Physical Review B. – 2018. – V. 98, 214421.
146. Джепаров Ф. С., Каганов И. В., Хеннер Е. К. Спиновая динамика в твердых низкоконцентрированных парамагнетиках // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 1997. – Т. 112. – №. 2. – С. 596–617.
147. Dzheparov F. S. Spin dynamics in disordered solids // Journal of Superconductivity and Novel Magnetism. – 2007. – V. 20. – P. 161–168.
148. **Tsiberkin K. B., Belozerova T. S., Henner V. K. Simulation of free induction decay at low-temperature with spin waves and classical spins // European Physical Journal B. – 2019. – V. 92, 140.**
149. de Wijn A. S., Hess B., Fine B. V. Largest Lyapunov exponents for lattices of interacting classical spins // Physical Review Letters. – 2012. – V. 109, 034101.
150. Elsayed T. A., Hess B., Fine B. V. Signatures of chaos in time series generated by many-spin systems at high temperatures // Physical Review E. – 2014. – V. 90, 022910.
151. Шутый А. М. Регулярная и хаотическая динамика дипольного момента квадратных массивов диполей // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2014. – Т. 145. – Вып. 6. – С. 1048–1060.
152. Шутый А. М., Семенцов Д. И. Равновесные состояния и перемагничивание линейной цепочки магнитных моментов // Физика металлов и металловедение. – 2016. – Т. 117. – № 2. – С. 130.

153. Шутый А. М., Семенцов Д. И. Возбуждение в решетке магнитных наночастиц волны ориентационного перехода и хаотической динамики // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2017. – Т. 106. – № 5–6. – С. 334–342.

154. Шутый А. М., Семенцов Д. И. Динамика магнитного момента ограниченных дипольных решеток в переменном поле // Физика твердого тела. – 2017. – Т. 59. – № 1. – С. 75–81.

155. Циберкин К. Б., Гажи М. Магнитный отклик треугольного графона // Вестник Пермского Университета. Физика. – 2018. – № 3 (41). – С. 65–72.

156. Holstein T., Primakoff H. Field dependence of the intrinsic domain magnetization of a ferromagnet // Physical Review. – 1940. – V. 58. – P. 1098–1113

157. **Tsiberkin K. B. Collective spin excitations in 2D paramagnet with dipole interaction // European Physical Journal B. – 2016. – Vol. 89 (2), 54.**

158. **Tsiberkin K. B. Continuum model of free induction decay in diluted magnetic composite // Applied Magnetic Resonance. – 2021. – Vol. 52 – P. 867–877.**

159. **Циберкин К. Б.**, Белозерова Т. С., Хеннер В. К. Спин-волновое описание двумерного парамагнетика в магнитном поле // Вестник Пермского Университета. Физика. – 2016. – № 2 (33). – С. 35–48.

160. **Tsiberkin K., Kovycheva E. Spin-wave model of free induction decay in ring spin cluster // Applied Magnetic Resonance. – 2024. – V. 55. – P. 565–574.**

161. Brandt U., Jacoby K. Exact results for the dynamics of one-dimensional spin-systems // Zeitschrift für Physik B. – 1976. – V. 25. – P. 181–187.

162. Ciftja O. Results for the ground state energy of a finite system of dipoles in a one-dimensional crystal lattice // Results in Physics. – 2020. – V. 17, 103178.

163. **Tsiberkin K. B. Magnetization dynamics of a linear dipole chain with accounting for all-to-all interactions // Physica B. – 2025. – Vol. 702, 417016.**
164. Dzheparov F. S. Interplay of classical and quantum spin dynamics // Magnetic Resonance in Solids. – 2012. – V. 14 (2), 12201.
165. Ohno H., Shen A., Matsukura F. et al. (Ga, Mn) As: A new diluted magnetic semiconductor based on GaAs // Applied Physics Letters. – 1996. – V. 69. – P. 363–365.
166. Furdyna J. K. Diluted magnetic semiconductors // Journal of Applied Physics. – 1988. – V. 64. – P. R29–R64.
167. Fukumura T., Toyosaki H., Yamada Y. Magnetic oxide semiconductors // Semiconductor Science and Technology. – 2005. – V. 20. – P. S103–S111.
168. Lukasiewicz M. I., Wójcik-Głodowska A., Guziewicz E. et al. ZnO, ZnMnO and ZnCoO films grown by atomic layer deposition // Semiconductor Science and Technology. – 2012. – V. 27, 074009.
169. Story T., Galazka R. R., Frankel R. B., Wolff P. A. Carrier-concentration-induced ferromagnetism in PbSnMnTe // Physical Review Letters. – 1986. – V. 56. – P. 777–779.
170. Ohno H., Munekata H., Penney T. et al. Magnetotransport properties of p-type (In,Mn)As diluted magnetic III–V semiconductors // Physical Review Letters. – 1992. – V. 68. – P. 2664–2667.
171. Sheu B. L., Myers R. C., Tang J.-M. et al. Onset of ferromagnetism in low-doped $Ga_{1-x}Mn_xAs$ // Physical Review Letters. – 2007. – V. 99, 227205.
172. Linnarson M., Janzen E., Monemar B. et al. Electronic structure of the $GaAs{:}Mn_{Ga}$ center // Physical Review B. – 1997. – V. 55. – P. 6938–6944.
173. Pappert K., Schmidt M. J., Hümpfner S. et al. Magnetisation-switched metal-insulator transition in a (Ga, Mn)As tunnel device // Physical Review Letters. – 2006. – V. 97, 186402.

174. Khazen Kh., von Bardeleben H. J., Cantin J. L. et al. Ferromagnetic resonance of $Ga_{0.93}Mn_{0.07}As$ thin films with constant Mn and variable free-hole concentrations // Physical Review B. – 2008. – V. 77, 165204.
175. Bihler C. et al. $Ga_{1-x}Mn_xAs$/piezoelectric actuator hybrids: A model system for magnetoelastic magnetization manipulation // Physical Review B. – 2008. – V. 78, 045203.
176. Overby M., Chernyshov A., Rokhinson L. P. et al. GaMnAs-based hybrid multiferroic memory device // Applied Physics Letters. – 2008. – V. 92, 192501.
177. Casiraghi A., Rushforth A. W., Zemen J. et al. Piezoelectric strain induced variation of the magnetic anisotropy in a high Curie temperature (Ga,Mn)As sample // Applied Physics Letters. – 2012. – V. 101, 082406.
178. Ohno H., Chiba D., Matsukura F. et al. Electric-field control of ferromagnetism // Nature. – 2000. – V. 408. – P. 944–946.
179. Haury A., Wasiela A., Arnoult A. et al. Observation of a ferromagnetic transition induced by two-dimensional hole gas in modulation-doped CdMnTe quantum wells // Physical Review Letters. – 1997. – V. 79. – P. 511–514.
180. Chiba D., Yamanouchi M., Matsukura F. et al. Electrical manipulation of magnetization reversal in a ferromagnetic semiconductor // Science. – 2003. – V. 301. – P. 943–945.
181. Chiba D., Sawicki M., Nishitani Y. et al. Magnetization vector manipulation by electric field // Nature. – 2008. – V. 455. – P. 515–518.
182. Elsen M., Boulle O., George J.-M. et al. Spin transfer experiments on (Ga, Mn)As/(In, Ga)As/(Ga, Mn)As tunnel junctions // Physical Review B. – 2006. – V. 73, 035303.
183. Chernysov A., Overby M., Liu X. et al. Evidence for reversible control of magnetization in a ferromagnetic material by means of spin-orbit magnetic field // Nature Physics. – 2009. – V. 5. – P. 656–659.

184. Endo M., Matsukura F., Ohno H. Current induced effective magnetic field and magnetization reversal in uniaxial anisotropy (Ga, Mn)As // Applied Physics Letters. – 2010. – V. 97, 222501.
185. Oiwa A., Slupinski T., Munekata H. Control of magnetization reversal processes by light illumination in ferromagnetic semiconductor heterostructure p-(In, Mn)As/GaSb // Applied Physics Letters. – 2001. – V. 78. – P. 518–520.
186. Oiwa A., Mitsumori Y., Moriya R. et al. Effect of optical spin injection on ferromagnetically coupled Mn spins in the III-V magnetic alloy semiconductor (Ga, Mn)As // Physical Review Letters. – 2002. – V. 88, 137202.
187. Knoff W., Świątek K., Andrearczyk T. et al. Magnetic anisotropy of semiconductor (Ge, Mn)Te microstructures produced by laser and electron beam induced crystallization // Physica Status Solidi B. – 2011. – V. 248. – P. 1605–1608.
188. Джепаров Ф. С., Фельдман Э. Б. Насыщение двухспинового резонанса в магниторазбавленных твёрдых телах // Известия АН СССР. Серия физическая. – 1988. – Т. 52. – № 3. – С. 455–459.
189. Dzheparov F. S., Henner E. K. Magnetic resonance in magnetically diluted solids at low temperatures // Physica Status Solidi B. – 1989. – V. 151. – N. 2. – P. 663–674.
190. Katsnelson M. I., Irkhin V. Yu., Chioncel L. et al. Half-metallic ferromagnets: From band structure to many-body effects // Reviews of Modern Physics. – 2008. – V. 80. – P. 315–378.
191. Иванов В. А. Разбавленные магнитные полупроводники и спинтроника // Известия Российской академии наук. Серия физическая. – 2007. – Т. 71. – №. 11. – С. 1651–1653.
192. Patel S. K. S., Dewangan K., Srivastav S. K. et al. Synthesis of monodisperse In_2O_3 nanoparticles and their d^0 ferromagnetism // Current Applied Physics. – 2014. – V. 14. – P. 905–908.

193. Катанин А. А., Ирхин В. Ю. Магнитный порядок и спиновые флуктуации в низкоразмерных системах // Успехи физических наук. – 2007. – Т. 177. – №. 6. – С. 639–662.
194. Kindo K., Motokawa M., de Boer F. R. High magnetic fields. – Singapore: World Scientific, 2006. – 125 p.
195. Edwards S. F., Anderson P. W. Theory of spin glasses // Journal of Physics F: Metal Physics. – 1975. – V. 5. – P. 965–974.
196. Diep H. T. Frustrated spin systems. – Singapore: World Scientific, 2013. – 644 p.
197. Булаевский Л. Н. К теории неоднородной антиферромагнитной цепочки спинов // Журнал экспериментальной и теоретической физики – 1963. – Т. 44. – С. 1008–1014.
198. Bonner J. C., Blote H. W. J., Bray J. W. et al. Susceptibility calculations for alternating antiferromagnetic chains // Journal of Applied Physics. – 1979. – V. 50. – P. 1810–1812.
199. Takigawa M., Kodama H., Horvatic M. et al. High field properties of the frustrated 2D dimer spin system $SrCu_2(BO_3)_2$ // Journal of Physics: Conference Series. – 2006. – V. 51, 23.
200. Lipps F., Arkenbout A. H., Polyakov A. et al. Magnetic properties of the spin-1 chain compound $NiCl_3C_6H_5CH_2CH_2NH_3$ // Low Temperature Physics. – 2018. – V. 43. – P. 1298–1304.
201. Urushihara D., Kawaguchi S., Fukuda K. et al. Crystal structure and magnetism in the S = 1/2 spin dimer compound $NaCu_2VP_2O_{10}$ // IUCrJ. – 2020. – V. 7. – P. 656–662.
202. Vasiliev A., Volkova O., Zvereva E. et al. Milestones of low-D quantum magnetism // npj Quantum Materials. – 2018. – V. 3, 18.
203. Chen Y.-H., Tao H.-S., Yao D.-X. et al. Kondo metal and ferrimagnetic insulator on the triangular Kagome lattice // Physical Review Letters. – 2012. – V. 108, 246402.

204. Zhang X. L., Liu L.-F., Liu W.-M. Quantum anomalous Hall effect and tunable topological states in 3d transition metals doped silicone // Scientific Reports. – 2013. – V. 3, 2908.
205. Hirohata A., Yamada K., Nakatani Y. et al. Review on spintronics: Principles and device applications // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2020. – V. 509, 166711.
206. **Tsiberkin K., Strunina Y. Magnetism of dimer ensemble with random exchange energy // European Physical Journal B. – 2021. – Vol. 94, 21.**
207. Свидетельство № 2016661950. SpinChainLevels: программа для ЭВМ / **К. Б. Циберкин** (RU). – Правообладатель: Циберкин К. Б. № 2016619321 – заявл. 30.08.16; опубл. 20.11.16, Бюл. № 11, 8.3 Кб.
208. Villain J., Bak P. Two-dimensional Ising model with competing interactions: floating phase, walls and dislocations // Journal de Physique France. – 1981. – V. 42. – N. 5. – P. 657–668.
209. da Silva C. R., Countinho S. Ising model on the Bethe lattice with competing interactions up to the third-nearest-neighbor interaction // Physical Review B. – 1986. – V. 34. – N. 11. – P. 7975–7985.
210. Chitov G. Y., Gros C. Ordering in two-dimensional Ising models with competing interactions // Low Temperature Physics. – 2005. – V. 31. – N. 8–9. – P. 722–734.
211. **Циберкин К. Б. Низкотемпературный антиферромагнетизм в модели Изинга с конкурирующими взаимодействиями // Вестник Пермского Университета. Физика. – 2021. – № 2. – С. 64–71.**
212. **Tsiberkin K. B. Magnetization wave dynamics within a diluted magnetic semiconductor // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2021. – Vol. 523, 167596.**
213. **Tsiberkin K. B.** Traveling magnetization waves in diluted magnetic material // Journal of Physics: Conference Series. – 2021. – Vol. 1809, 012016.

214. **Циберкин К. Б. Волновая динамика намагниченности ферромагнитной примеси в парамагнитной матрице // Физика металлов и металловедение. – 2021. – Т. 122, № 4. – С. 384–387.**
215. Dietl T. A ten-year perspective on dilute magnetic semiconductors and oxides // Nature Materials. – 2010. – V. 9. – P. 965–974.
216. Chakraborty A., Bouzerar G. Long wavelength spin dynamics in diluted magnetic systems: Scaling of magnon lifetime // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2015. – V. 381. – P. 50–55.
217. König J., Lin H.-H., Macdonald A. H. Ferromagnetism and spin waves in diluted magnetic semiconductors // Physica E. – 2001. – V. 10. – P. 139–142.
218. Shmakov P. M., Dmitriev A. P., Kachorovskii V. Yu., Spin waves in diluted magnetic quantum wells // Physical Review B. – 2011. – V. 83, 233204.
219. Кусраев Ю. Г. Спиновые явления в полупроводниках: физика и приложения // Успехи физических наук. – 2010. – Т. 180. – № 7. – С. 759–773.
220. Lampel G. Nuclear dynamic polarization by optical electronic saturation and optical pumping in semiconductors // Physical Review Letters. – 1968. – V. 20. – P. 491–493.
221. Parsons R. R. Band-to-band optical pumping in solids and polarized photoluminescence // Physical Review Letters. – 1969. – V. 23. – P. 1152–1154.
222. Дьяконов М. И., Перель В. И. О возможности оптической ориентации равновесных электронов в полупроводниках // Письма в ЖЭТФ. – 1971. – Т. 13. – С. 206–207.
223. Воробьев Л. Е., Ивченко Е. Л., Пикус Г. Е., и др. Оптическая активность в теллуре, индуцированная током // Письма в ЖЭТФ. 1979. – Т. 29. – С. 485–488.
224. Budker D., Romalis M. Optical magnetometry // Nature Physics. – 2007. – Vol. 3. – P. 227–234.

225. Happer W., Jau Y.-Y., Walker T. Optically Pumped Atoms, New-York: Wiley, 2011. 234 p.
226. Walker T. G., Larsen M. S. Spin-exchange-pumped NMR gyros // Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics. – 2016. – V. 65. – P. 377–405.
227. Вершковский А. К., Литманович Ю. А., Пазгалёв А. С., Пешехонов В. Г. Гироскоп на ядерном магнитном резонансе: предельные характеристики // Гироскопия и навигация. – 2018. – Т. 26. – № 1 (100). – С. 55–80.
228. Mott N. F. The scattering of fast electrons by atomic nuclei // Proceedings of the Royal Society of London A. – 1929. – V. 124. – P. 425–442.
229. Kato Y. K., Myers R. C., Gossard A. C. et al. Observation of the spin Hall effect in semiconductors // Science. – 2004. – V. 306. – P. 1910–1913.
230. Stern N. P., Ghosh S., Xiang G. et al. Current-induced polarization and the spin Hall effect at room temperature // Physical Review Letters. – 2006. – V. 97, 126603.
231. Ganishev S. D., Danilov S. N., Schneider P. et al. Electric current-induced spin orientation in quantum well structures // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2006. – V. 300. – P. 127–131.
232. Kato Y. K., Myers R. C., Gossard A. C. et al. Current-induced spin polarization in strained semiconductors // Physical Review Letters. – 2004. – V. 93, 176601.
233. Аверкиев Н. С., Дьяконов М. И. Ток, обусловленный неоднородностью спиновой ориентации электронов в полупроводнике // Физика и техника полупроводников. – 1983. – Т. 17. – С. 629–632.
234. Бакун А. А., Захарченя Б. П., Рогачев А. А., и др. Обнаружение поверхностного фототока, обусловленного оптической ориентацией электронов в полупроводнике // Письма в ЖЭТФ. – 1984. – Т. 40. – С. 464–466.
235. Аснин В. М., Бакун А. А., Данишевский А. М., и др. Обнаружение фотоэдс, зависящей от знака циркулярной поляризации света // Письма в ЖЭТФ. – 1978. – Т. 28. – С. 80–83.

236. Салихов К. М. О развитии перспективных применений электронного парамагнитного резонанса в Казанском физико-техническом институте им. Е.К. Завойского РАН // Успехи физических наук. – 2016. – Т. 186. – № 6. – С. 659–666.
237. Salikhov K. M. Consistent paradigm of the spectra decomposition into independent resonance lines // Applied Magnetic Resonance. – 2016. – V. 47. – N. 11. – P. 1207–1227.
238. Салихов К. М. Состояние теории спинового обмена в разбавленных растворах парамагнитных частиц. Новая парадигма спинового обмена и его проявлений в ЭПР-спектроскопии // Успехи физических наук. – 2019. – Т. 189. – № 10. – С. 1017–1043.
239. Салихов К. М., Бакиров М. М., Зарипов Р. Б., Хайрутдинов И. Т. Экспериментальное подтверждение образования спинового поляритона в разбавленных растворах нитроксильных радикалов // Казанский физико-технический институт имени Е.К Завойского. Ежегодник. – 2023. – Т. 22. – С. 66–72.
240. Дьяконов М. И., Перель В. И. Спиновая релаксация электронов проводимости в полупроводниках без центра инверсии // Физика твердого тела. – 1971. – Т. 13. – С. 3581–3585.
241. Wilamowski Z., Jantsch W. Suppression of spin relaxation of conduction electrons by cyclotron motion // Physical Review B. – 2004. – V. 69, 035328.
242. Semenov Y. G. Electron spin relaxation in semiconductors and semiconductor structures // Physical Review B. – 2003. – Vol. 67, 115319.
243. Dzhioev R. I., Kavokin K. V., Korenev V. L. et al. Suppression of Dyakonov-Perel spin relaxation in high-mobility n-GaAs // Physical Review Letterts. – 2004. – Vol. 93, 216402.
244. Glazov M. M. Magnetic field effects on spin relaxation in heterostructures // Physical Review B. – 2004. – Vol. 70, 195314.

245. Бир Г. Л., Аронов А. Г., Пикус Г. Е. Спиновая релаксация электронов, рассеиваемых дырками // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 1975. – Т. 69. – С. 1382–1397.
246. Camilleri C., Teppe F., Scalbert D. et al. Electron and hole spin relaxation in modulation-doped CdMnTe quantum wells // Physical Review B. – 2001. – V. 64, 085331.
247. Lombez L., Braun P. F., Carrere H. et al. Spin dynamics in dilute nitride semiconductors at room temperature // Applied Physics Letters. – 2005. – V. 87, 252115.
248. Khaetskii A. V., Nazarov Yu. V. Spin relaxation in semiconductor quantum dots // Physical Review B. – 2000. – V. 61. – P. 12639–12642.
249. Woods L. M., Reinecke T. L., Lyanda-Geller Y. Spin relaxation in quantum dots // Physical Review B. – 2002. – V. 66, 161318(R).
250. Berashevich J., Chakraborty T. Sustained ferromagnetism induced by H-vacancies in graphene // Nanotechnology. – 2010. – V. 21, 355201J
251. Zhao R., Afaneh T., Dharmasena R. et al. Study of nitrogen doping of graphene via in-situ transport measurements // Physica B: Condensed Matter. – 2016. –V. 490. – P. 21–24.
252. Zhao R., Jayasingha R., Sherehiy A. et al. In situ transport measurements and band gap formation of fluorinated graphene // Journal of Physical Chemistry C. – 2015. – V. 119. – N. 34. – P. 20150–20155.
253. **Rudakov G. A., Tsiberkin K. B., Ponomarev R. S. et al. Magnetic properties of transition metal nanoparticles enclosed in carbon nanocages // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2019. – V. 427. – P. 34–39.**
254. **Сосунов А. В., Циберкин К. Б., Хеннер В. К. Влияние функционализации углеродных нанооболочек на их электрические свойства // Вестник Пермского Университета. Физика. – 2019. – № 2. – С. 63–68.**

255. Boukhvalov D. W. Stable antiferromagnetic graphone // Physica E. – 2010. – V. 43. – P. 199–201.
256. Friedman A., Robinson J. T., Perkins K. et al. Extraordinary magnetoresistance in shunted chemical vapor deposition grown graphene devices // Applied Physics Letters. – 2011. – V. 99, 022108.
257. Zhou Y., Han B., Liao Zh.-M. et al. From positive to negative magnetoresistance in graphene with increasing disorder // Applied Physics Letters. – 2011. – V. 98, 222502.
258. Естюнин Д. А., Климовских И. И., Ворошнин В. Ю., и др. Формирование квазисвободного графена с запрещенной зоной в точке Дирака при интеркаляции атомов Pb под графен на Re(0001) // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 2017. – Т. 152. – № 5 (11). – С. 903–909.
259. Kogan E. RKKY interaction in gapped or doped graphene // Graphene. – 2012. – V. 2, 8.
260. Saremi S. RKKY in half-filled bipartite lattices: graphene as an example // Physical Review B. – 2007. – V. 76, 184430.
261. Rudenko A. N., Keil F. J., Katsnelson M. I. et al. Exchange interactions and frustrated magnetism in single-side hydrogenated and fluorinated graphene // Physical Review B. – 2013. – V. 88, 081405(R).
262. Mazurenko V. V., Rudenko A. N., Nikolaev S. A. et al. Role of direct exchange and Dzyaloshinskii-Moriya interactions in magnetic properties of graphene derivatives: C_2F and C_2H // Physical Review B. – 2016. – V. 94, 214411.
263. Mohammadi Y., Moradian R. RKKY interaction in bilayer graphene // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2015. – V. 396. – P. 121–127.
264. Black-Schaffer A. M. RKKY coupling in graphene // Physical Review B. – 2010. – V. 81, 205416.

265. Lee H., Kim J., Mucciolo E. R. et al. RKKY interaction in disordered graphene // Physical Review B. – 2012. – V. 85, 075420.
266. Jiang L., Lu X., Gao W. et al. RKKY interaction in AB-stacked multilayer graphene // Journal of Physics: Condensed Matter. – 2012. – V. 24, 206003.
267. Cheianov V. V., Syljuasen O., Altshuler B. L., Fal'ko V. I. Ordered states of adatoms on graphene // Physical Review B. – 2009. – V. 80, 233409.
268. Sherafati M., Satpathy S. RKKY interaction in graphene from the lattice Green's function // Physical Review B. – 2011. – V. 83, 165425.
269. Lee D., Nekrashevich I., Lee H. J. et al. Spin-glass behavior in graphene oxide powders induced by nonmagnetic sodium sulfate // Chemistry of Material. – 2017. – V. 29. – P. 3873–3882.
270. Sarkar S., Mondai A., Giri N. et al. Spin glass like transition and the exchange bias effect in Co_3O_4 nanoparticles anchored onto graphene sheets // Physical Chemistry Chemical Physics. – 2019. – V. 21. – P. 260–267.
271. Yukalov V. I., Henner V. K., Belozerova T. S. Generation of coherent radiation by magnetization reversal in graphene // Laser Physics Letters. – 2016. – V. 13, 016001.
272. Yukalov V. I., Henner V. K., Belozerova T. S. et al. Spintronics with magnetic nanomolecules and graphene flakes // Journal of Superconductivity and Novel Magnetism. – 2016. – V. 29. – P. 721–726.
273. Henner E., Shaposhnikov I., Bonis B., Sardos R. EPR concentration dependence in magnetically diluted crystals with strong spin-spin interaction // Journal of Magnetic Resonance. – 1978. – V. 32 (1). – P. 107–114.
274. Хеннер Е. К., Шапошников И. Г. Об одном численном методе статистической теории магнитного резонанса в твёрдых телах // Радиоспектроскопия. – 1976. – № 10. – С. 74–81
275. Henner V. K., Klots A., Nepomnyashchy A. A., Belozerova T. S. The correspondence principle for spin systems: simulations of free induction decay with classical and quantum spins // Applied Magnetic Resonance. – 2021. – V. 52. – P. 859–866.

276. **Ковычева Е. И., Циберкин К. Б. Магнитный резонанс сферических и кольцевых спиновых кластеров // Вестник Пермского университета. Физика. –2022. – № 2. – С. 26–35.**
277. **Tsiberkin K.B. Averaging of the free induction decay from an ensemble of small spin clusters // European Physical Journal B. – 2023. – V. 96, 70.**
278. Hogben H. J., Krzystyniak M., Charnock G. T. P. et al. Spinach – a software library for simulation of spin dynamics in large spin systems // Journal of Magnetic Resonance. – 2011. – V. 208. – N. 2. – P. 179–194.
279. Murray W. A., Barnes W. L. Plasmonic materials // Advanced materials. – 2007. – Т. 19. – №. 22. – С. 3771–3782.
280. Kresin V. V. Collective resonances and response properties of electrons in metal clusters // Physics Reports. – 1992. – V. 220. – N. 1. – P. 1–52.
281. Kotov V. N., Uchoa B., Pereira V. M. et al. Electron-electron interactions in graphene: current status and perspectives // Reviews of Modern Physics. – 2012. – V. 84. – N. 3. – P. 1067–1125.
282. Гольдман И. Колебания электронного газа с функцией распределения Ферми в состоянии вырождения // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 1947. – Т. 17. – С. 681–685.
283. Bohm D., Pines D. A collective description of electron interactions: III. Coulomb interactions in a degenerate electron gas // Physical Review. – 1953. – V. 92. – P. 609–625.
284. Bohren C. F., Huffman D. R. Absorption and scattering of light by small particles. – New York: Wiley, 1983. – 544 p.
285. Kreihig U., Genzel L. Optical absorption of small metallic particles // Surface Science. – 1985. – V. 156. – P. 678–700.
286. Tomilin S. V., Karavaynikov A. V., Lyashko S. D. et al. Giant enhancement of the Faraday effect in a magnetoplasmonic nanocomposite // Optical Materials Express. – 2022. – V. 12. – P. 1522–1530.
287. Maier S. A. et al. Plasmonics: fundamentals and applications. – New York: Springer, 2007. – 245 p.

288. Lushnikov A. A., Simonov A. J. The electric polarizability of small metal particles // Physics Letters A. – 1973. – V. 41. – P. 45–48.
289. Pines D. Elementary excitations in solids. – Reading: Benjamin, 1953. – 299 p.
290. Harrison W. A. Electronic structure and the properties of solids: the physics of the chemical bond. – New York: Dover, 1989. – 586 p.
291. Fetter A. L., Walecka J. D. Quantum theory of many-particle systems. – San Francisco: McGraw-Hill, 1971. – 640 p.
292. Lushnikov A. A., Simonov A. J. Surface plasmons in small metal particles // Zeitschrift für Physik. – 1974. V. 270. – P. 17–24.
293. Bonacic-Koutecky V., Fantucci P., Koutecky J. Quantum chemistry of small clusters of elements of groups Ia, Ib, and IIa: fundamental concepts, predictions, and interpretation of experiments // Chemical Reviews. – 1991. – V. 91. – P. 1035–1108.
294. Dobson J. F., Vignale G., Das M. P. (ed.). Electronic density functional theory: recent progress and new directions. – New York: Springer, 2013. – 396 p.
295. De Heer W. A., Knight W. D. Chou M. Y. et al. Electronic shell structure and metal cluster. – In: Solid State Physics, Vol 40. / Ehrenreich H., Turnhull D. (Eds.) – New York: Academic Press, 1987. – P. 93–181.
296. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Теоретическая физика. Т. III. / Квантовая механика (нерелятивистская теория). – М.: Физматлит, 2004. – 800 с.
297. Yannoules C., Broglia R. A. Collective and single-particle aspects in the optical response of metal microclusters // Physical Review A. – 1991. – V. 44. – P. 5793–5802.
298. Myers W. D., Swiatecki W. J., Kodama T. et al. Droplet model of the giant dipole resonance // Physical Review C. – 1977. – V. 15. – P. 2032–2043.
299. Lundqvist S., March N. H. Theory of the inhomogeneous electron gas. – New York: Springer, 1983. – 396 p.

300. Ascarelli P., Cmi M. “Red shift” of the surface plasmon resonance absorption by fine metal particle // Solid State Communications. – 1976. – V. 18. – P. 385–388.
301. Ruppin R. Plasmon frequencies of small metal spheres // Journal of Physics and Chemistry of Solids. – 1978. – V. 39. – P. 233–237.
302. Van Vleck J. H. The theory of electric and magnetic susceptibilities. – Oxford: Oxford University Press, 1932. – 384 p.
303. Ирхин В. Ю., Ирхин Ю. П. Электронная структура, физические свойства и корреляционные эффекты в *d*- и *f*-металлах и их соединениях. – Москва, Ижевск: Регулярная и хаотическая динамика, Институт компьютерных исследований, 2019. – 475 с.
304. Макарова Т. Л. Магнитные свойства углеродных структур // Физика и техника полупроводников. – 2004. – Т. 38. – Вып. 6. – С. 641–664.
305. Baym G., Pethcik C. Landau Fermi-liquid theory: concepts and applications. – New York: Wiley, 1991. – 216 p.
306. Tinkham M. Introduction to superconductivity. – New York: Dover, 2004. – 480 p.
307. Gruner G. Density waves in solids. – Boston: Addison-Wesley, 1994. – 259 p.
308. Castro Neto A. H., Guinea F., Peres N. M. R. et al. The electronic properties of graphene // Reviews of Modern Physics. – 2009. – V. 81. – N. 1, 109.
309. Katsnelson M. I. Graphene: carbon in two dimensions. – Cambridge: Cambridge University Press, 2012. – 363 p.
310. Kouwenhoven L., Marcus M. Quantum dots // Physics World. – 1998. – V. 11. – N. 6. – P. 35–40.
311. Reimann S. M., Manninen M. Electronic structure of quantum dots // Reviews of Modern Physics. – 2002. – V. 74, 1283.
312. Alhassid Y. The statistical theory of quantum dots // Reviews of Modern Physics. – 2000. – V. 72, 895.

313. Бричкин С. Б., Разумов В. Ф. Коллоидные квантовые точки: синтез, свойства и применение // Успехи химии. – 2016. – Т. 85. – №. 12. – С. 1297–1312.
314. Силантьев А. В. Энергетический спектр и оптические свойства фуллерена C_{70} в модели Хаббарда // Оптика и спектроскопия. – 2018. – Т. 124. – С. 159–166.
315. Силантьев А. В. Энергетический спектр и оптические свойства фуллерена C_{28} в модели Хаббарда // Физика металлов и металловедение. – 2020. – Т. 121. – С. 501–507.
316. Силантьев А. В. Энергетический спектр и спектр оптического поглощения фуллерена C_{60} в модели Хаббарда // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2015. –Т. 148. – № 4. – С. 749–757.
317. Haddon R. C., Pasquarello A. Magnetism of carbon clusters // Physical Review B. – 1994. – V. 50. – N. 22. – P. 16459–16463.
318. Goings J. J., Lestrange P. J., Li X. Real-time time-dependent electronic structure theory // Computational Molecular Science. – 2018. –V. 8. – N. 1, e1341.
319. Tang Z. et al. Finite-temperature quasicontinuum method for multiscale analysis of silicon nanostructures // Physical Review B. – 2006. – V. 74. – N. 6, 064110.
320. Auf der Maur M., Pecchia A., Penazzi G. et al. Coupling atomistic and continuous media models for electronic device simulation // Journal of Computational Electronics. – 2013. – V. 12. – P. 553–562.
321. **Циберкин К. Б. Моделирование энергетического спектра углеродной сферы в пределе сплошной среды // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2022. – Т. 162. – Вып. 6 (12). – С. 968–974.**

322. **Tsiberkin K. B. Verification of continuum-based model of carbon materials // Nanosystems: Physics, Chemistry, Mathematics. – 2023. – V. 14 (5). – P. 539–543.**
323. **Циберкин К. Б., Сосунов А. В., Целиков Г. И. Исследование спектра поглощения углеродных наносфер // Оптика и Спектроскопия. – 2023. – Т. 131, вып. 8. – С. 1118–1122.**
324. **Tsiberkin K. B., Sosunov A. V., Govorina V. V., Neznakhin D. S., Henner V. K., Sumanasekera G. Magnetic properties of carbon nanocages: pure and with the Ni or Co inclusions // Solid State Sciences. – 2025. – Vol. 162, 107862.**
325. Захаров В. Е., Тахтаджян Л. А. Эквивалентность нелинейного уравнения Шредингера и уравнения ферромагнетика Гейзенберга // Теоретическая и математическая физика. – 1979. – Т. 38. – №. 1. – С. 26–35.
326. Ma W.-X., Chen M. Direct search for exact solutions to the nonlinear Schrödinger equation // Applied Mathematics and Computation. – 2009. – V. 215. – N. 8. – P. 2835–2842.
327. Рабинович М. И., Трубецков Д. И. Введение в теорию колебаний и волн. – Ижевск: Регулярная и хаотическая динамика, 2000. – 560 с.
328. Кузнецов А. П., Кузнецов С. П., Рыскин Н. М. Нелинейные колебания. – М.: Физматлит, 2002. – 292 с.
329. Tyulkina I. V., Goldobin D. S., Klimenko L. S., Pikovsky A. Dynamics of noisy oscillator populations beyond the Ott-Antonsen ansatz // Physical Review Letters. – 2018. – V. 120. – N. 26, 264101.
330. Remoissenet M. Waves called solitons: concepts and experiments. – Berlin: Springer, 2010. – 328 p.
331. Гуревич А. Г., Мелков Г. А. Магнитные колебания и волны. – М.: Наука, 1994. – 464 с.
332. Dyson F. J. General theory of spin-wave interactions // Physical Review. – 1956. – V. 102. – N. 5. – P. 1217–1230.

333. Малеев С. В. Рассеяние медленных нейтронов в ферромагнетике // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 1958. – Т. 33. – № 4. – С. 1010–1021.
334. Полянин А. Д., Зайцев В. Ф. Справочник по нелинейным уравнениям математической физики: точные решения. – М.: Физматлит, 2002. – 432 с.
335. Полянин А. Д. Справочник по линейным уравнениям математической физики. – М.: Физматлит, 2001. – 576 с.
336. Kubo R. Statistical-mechanical theory of irreversible processes. I. General theory and simple applications to magnetic and conduction problems // Journal of the Physical Society of Japan. – 1957. – Vol. 12 (6). – P. 570–586.
337. Градштейн И. С., Рыжик И. М. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. – М.: Наука, 1971. – 1108 с.
338. Dzhurakhalov A. A., Peeters F. M. Structure and energetics of hydrogen chemisorbed on a single graphene layer to produce graphane // Carbon. – 2011. – V. 49. – P. 3258–3266.
339. Федорюк М. В. Асимптотика: интегралы и ряды. – М.: Наука, 1987. – 544 с.
340. McCoy B. M., Wu T. T. The 2D Ising model. – Mineola, USA: Dover, 2014. – 480 p.
341. Villain J., Bak P. Two-dimensional Ising model with competing interactions: floating phase, walls and dislocations // J. Phys. France. – 1981. – Vol. 42. – N. 5. – P. 657–668.
342. Selke W. The ANNNI model – Theoretical analysis and experimental application // Physics Reports. – 1988. – Vol. 170 (4). – P. 213–264.
343. Chitov G. Y., Gros C. Ordering in two-dimensional Ising models with competing interactions // Low Temperature Physics. – 2005. – Vol. 31. – N. 8–9. – P. 722–734.
344. Newman M. E. J., Barkema G. T. Monte Carlo methods in statistical physics. – Oxford, UK: Clarendon Press, 1999. – 496 p.

345. NumPy API Reference: numpy.linalg.eigh. – (Электронный ресурс) – URL: https://numpy.org/doc/stable/reference/generated/numpy.linalg.eigh.html – (Дата обращения: 04.03.2025).
346. Бейтмен Г., Эрдейи А. Высшие трансцендентные функции. Т. 1. Гипергеометрическая функция, функции Лежандра. – М.: Наука, 1973. – 296 с.
347. Bogoljubov N. N. On a new method in the theory of superconductivity // Il Nuovo Cimento. – 1958. – V. **7**. – P. 794–805.
348. Cohen M.H., Keffer F. Dipolar sums in the primitive cubic lattices // Physical Review. – 1955. – V. 99. – N. 4. – P. 1128–1134.
349. Abramowitz M., Stegun I. A. Handbook of Mathematical Functions. – Washington D.C.: National Bureau of Standards, 1972. – 1060 p.
350. Каримов Ю. С. Переход двумерного парамагнетика в магнитоупорядоченное состояние // Письма в ЖЭТФ. – 1972. – Т 15. – № 6. – С. 332–336.
351. Зубарев Д. Н. Двухвременные функции Грина в статистической физике. // Успехи физических наук. – 1960. – Т. 71. – С. 71–116.
352. Borckmans P., Walgraef D. Irreversibility in paramagnetic spin systems: free induction decay and spin diffusion // Physical Review. – 1968. – V. 167. – P. 282–288.
353. Звездин А. К., Звездин К. А., Хвальковский А. В. Обобщенное уравнение Ландау–Лифшица и процессы переноса спинового момента в магнитных наноструктурах // Успехи физических наук. – 2008. – Т. 178. – С. 436–442.
354. Rao C. N. R., Seshadri R., Govindaraj A., Sen R. Fullerenes, nanotubes, onions and related carbon structures // Materials Science and Engineering. – 1995. – V. 15. – P. 209–262.
355. Rivelino R., Maniero A. M., Prudente F. V. et al. Theoretical calculations of the structure and UV–vis absorption spectra of hydrated C_{60} fullerene // Carbon. – 2006. – V. 44. – N. 14. – P. 2925-2930.

356. Scharff P., Risch K., Carta-Abelmann L. et al. Structure of C_{60} fullerene in water: spectroscopic data // Carbon. – 2004. – V. 42. – N. 5-6. – P. 1203–1206.
357. Krishnamoorthy K., Mohan R., Kim S. J. Graphene oxide as a photocatalytic material // Applied Physics Letters. – 2011. – V. 98, 244101.
358. Zhu J., Yan S., Feng N. et al. Near unity ultraviolet absorption in graphene without patterning // Applied Physics Letters. – 2018. – V. 112, 153106.
359. Neamen D. A. Semiconductor physics and devices. Basic Principles. – New York: McGraw-Hill, 2003. – 567 p.
360. Feng W., Long P., Feng Y., Li Y. Two-dimensional fluorinated graphene: synthesis, structures, properties and applications // Advanced Science. – 2016. – V. 3, 1500413.