

СЗ(04)
С-306

~~ИЗДАНИЕ~~



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

2685

**МАТЕРИАЛЫ СЕМИНАРА
ПО ПРОБЛЕМАМ ФИЗИКИ КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД
И РАССЕЯНИЮ НЕЙТРОНОВ**

Дубна 6-16 июля 1965 г.

Дубна 1966

2685

МАТЕРИАЛЫ СЕМИНАРА
ПО ПРОБЛЕМАМ ФИЗИКИ КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД
И РАССЕЯНИЮ НЕЙТРОНОВ

Дубна 6-16 июля 1965 г.

3655/3 89.

ИЗДАТЕЛЬСТВО АТОМЭНЕРГЕТИКИ
МОСКВА 1965

СО Д Е Р Ж А Н И Е

	Стр.
А. ХРЫНКЕВИЧ	
Исследование внутренних магнитных полей при помощи эффекта Мессбауэра . (ОБЗОР)	5
Е. САВВИКИ	
Наблюдение магнитной сверхструктуры в цинковом феррите методом эффекта Мессбауэра	19
К. БЛИНОВСКИЙ	
Обзор последних экспериментальных работ, посвященных критическому рассеянию нейтронов	23
А. ВАНИЦ	
Экспериментальное исследование магнетонных спектров . (ОБЗОР)	45

6-16 июля 1965г. в Дубне проходил семинар по проблемам физики конденсированных сред и рассеяние нейтронов.

В работе семинара принимало участие около 120 физиков из стран-участниц Объединенного института ядерных исследований.

На семинаре были обсуждены вопросы, связанные с исследованиями атомной структуры и динамики магнетиков, фазовых переходов и критического состояния вещества методами рассеяния нейтронов и эффекта Мессбауэра.

Для публикации в Оргкомитет было представлено только 4 доклада, которые и вошли в настоящий сборник.

Основную работу по подготовке докладов к печати проделали Ф.А.РЯБОВА и А.В.СТРЕЖКОВ.

ИССЛЕДОВАНИЕ ВНУТРЕННИХ МАГНИТНЫХ ПОЛЕЙ ПРИ ПОМОЩИ
ЭФФЕКТА МЭСБАУЭРА

А. ХРЫНКЕВИЧ

ИНСТИТУТ ФИЗИКИ ПРИ ЯГЕЛЛОНСКОМ УНИВЕРСИТЕТЕ,
КРАКОВ

I. Методы измерений внутренних магнитных полей

Методы исследования магнитных свойств вещества можно разделить на две группы. Методы первой группы, такие как измерения намагниченности насыщения или рассеяния нейтронов на магнитных подрешетках, дают сведения о значениях магнитных моментов атомов и ионов и о характере их упорядочения. Методы второй группы позволяют определять напряженность внутренних магнитных полей, действующих в данном материале на атомные ядра. Этими методами являются:

1. Магнитный ядерный резонанс.
2. Тонкая структура линий парамагнитного электронного резонанса.
3. Измерения теплоемкости при низких температурах.
4. Эффект Мессбауэра.
5. Угловая корреляция γ - излучения.
6. Угловое распределение ядерного излучения ориентированных ядер (анизотропия γ -излучения и асимметрия β - излучения).

В перечисленных методах ядро играет роль миниатюрного пробника, измеряющего внутриатомное поле. Из полученной на опыте энергии взаимодействия магнитного момента ядра с внутренним полем E_M , зная значение ядерного g - фактора, можно вычислить напряжение эффективного магнитного поля $H_{эфф}$ по формуле

$$E_M = \hbar \omega = g \mu_N H_{эфф}, \quad (I)$$

где $\mu_N = 3,15 \cdot 10^{-12} \text{ эВ/г}$ - ядерный магнетон, а ω - частота ларморовской прецессии.

Существенную роль при определении внутренних магнитных полей играет время спиновой релаксации электронной оболочки. На ядро действует определенное магнитное поле при условии, что время релаксации τ_r (среднее время взаимодействия поля с ядром) больше периода ларморовской прецессии ядра в этом поле:

$$\tilde{\sigma}_r > \frac{1}{\omega} = \frac{\hbar}{g\mu_N H \text{эфф}} \quad (2)$$

Если это условие не выполняется, то ширина уровней сверхтонкой структуры становится сравнимой с разностью энергий между соседними уровнями, или больше её, тогда напряженность поля, действующая на ядро, не будет иметь определенного значения. Вследствие этого только в немногих случаях долгого времени релаксации можно надеяться определить магнитное поле, действующее на ядро в парамагнитных материалах. В магнетиках ниже температуры Кюри (или температуры Нееля) етомные магнитные моменты вследствие обменного взаимодействия связываются таким образом, что каждый атом имеет среднее по времени значение намагниченности в направлении магнитной оси. Тогда на ядре появляется магнитное поле, которое меняется с температурой таким же образом как и намагниченность доменов.

Метод ядерного магнитного резонанса позволяет получать наиболее точные значения внутренних магнитных полей, но необходимость работы с высокими радиочастотами приводит ко многим затруднениям технического характера. Кроме этого наблюдение резонансного сигнала обусловлено стенками доменов и поэтому невозможно определить направление магнитного поля, действующего на ядро относительно направления намагниченности образца.

Первые три из перечисленных методов требуют применения макроскопического количества материала, и в связи с этим измерение может быть проведено в принципе только для стабильных ядер в основном состоянии.

В методе исследования углового распределения излучения ядер, ориентированных во внутреннем поле, время жизни β - активного ядра должно быть достаточно долгим, чтобы могла быть достигнута стационарная ориентация ядер. Оно должно быть больше времени ядерной релаксации в данном образце, которое управляет процессом ориентации.

В методах, основанных на использовании эффекта Мессбауэра и возмущения угловой корреляции γ - излучения, точность измерения зависит от времени жизни возбужденного состояния ядерного уровня. В первом случае это есть время жизни резонансно возбужденного состояния, во втором - время жизни промежуточного состояния γ - γ каскаде. Однако время жизни ядерного уровня не имеет столь принципиального значения как время электронной релаксации. Хотя короткое время жизни возбужденного уровня может сделать невозможным проведение измерения внутреннего поля, но оно не влияет на определенность поля, действующего на ядро. Так, например, в методе угловой корреляции во многих случаях ядра успевают за время жизни промежуточного состояния совершить только небольшую часть полного оборота (даже $< 1^\circ$), но это не мешает определить энергию их взаимодействия с магнитным полем путем измерения среднего угла поворота.

2. Происхождение магнитных полей, действующих на ядро

Гамильтониан, описывающий магнитное взаимодействие ядра с электронной оболочкой, может быть представлен в виде:

$$\mathcal{H}_m = -g\mu_N \vec{I} \cdot \vec{H}_{эфф} = -2\beta g\mu_N \vec{I} \sum_i \left[\frac{8\pi}{3} \vec{S}_i \delta(\vec{r}_i) + \frac{\vec{L}_i}{r_i^3} + \left(\frac{3\vec{r}_i \cdot (\vec{S}_i \cdot \vec{r}_i)}{r_i^5} - \frac{\vec{S}_i}{r_i^3} \right) \right], \quad (3)$$

где β - магнетон Бора, μ_N - ядерный магнетон, g - ядерный гиромгнитный фактор, I - спин ядра, $\vec{r}_i, \vec{S}_i, \vec{L}_i$ - радиус-вектор, спиновый угловой момент и орбитальный угловой момент i -го электрона. Тогда оператор магнитного поля в точке ядра имеет форму

$$\vec{H}_{эфф} = -2\beta \sum_i \left[\frac{8\pi}{3} \vec{S}_i \delta(\vec{r}_i) + \frac{\vec{L}_i}{r_i^3} + \left(\frac{3\vec{r}_i \cdot (\vec{S}_i \cdot \vec{r}_i)}{r_i^5} - \frac{\vec{S}_i}{r_i^3} \right) \right], \quad (4)$$

а магнитное поле, действующее на ядро, вычисляется как среднее значение этого оператора.

Первый член

$$H_S = -\frac{16\pi}{3} \beta \langle \sum (|\psi(0)_{S+}|^2 - |\psi(0)_{S-}|^2) \rangle, \quad (5)$$

так называемый контактный член Ферми описывает непосредственную связь ядра с S электронами. Это взаимодействие имеет место тогда, когда плотность в точке ядра S электронов с противоположно направленными спинами не является точно одной и той же, т.е. когда

$$|\psi(0)_{S+}|^2 \neq |\psi(0)_{S-}|^2.$$

Разница распределения плотности S электронов с противоположными направлениями спинов появляется тогда, когда атом имеет частично заполненную магнитную оболочку ($3d$ в случае переходных металлов группы железа или $4f$ в случае элементов редких земель). Обменное взаимодействие электронных спинов незаполненной оболочки со спинами S электронов приводит к притяжению электронов с параллельными спинами и к отталкиванию электронов с антипараллельными спинами. Вследствие этого взаимодействия, если S оболочка находится внутри незаполненной электронной оболочки, в ядре возрастает плотность S электронов со спином, антипараллельным результирующему спину электронов незаполненной оболочки, и на ядро действует магнитное поле, противоположное полю, создающему немагнитность незаполненной оболочки.

Второй член в формуле (4) описывает поле, созданное результирующим орбитальным угловым моментом L электронов частично незаполненной оболочки.

$$H_L = -2\beta \langle r^{-3} \rangle \langle L^2 \rangle = -2\beta \langle r^{-3} \rangle (\lambda - 2) \langle S^2 \rangle, \quad (6)$$

где λ - фактор Ланде. Орбитальный вклад в магнитное поле, действующее на ядро, исчезает, когда орбитальный угловой момент электронов $L = 0$.

Третий член формулы (4) описывает вклад в магнитное поле на ядре. Этот член обусловлен дипольным взаимодействием со спинами электронов

$$H_D = -2\beta \left\langle \frac{3\vec{r}(\vec{S}_i \cdot \vec{r})}{r^5} - \frac{\vec{S}_i}{r^3} \right\rangle. \quad (7)$$

Дипольный вклад исчезает тогда, когда спин-орбитальное взаимодействие слабое и кристаллическая решетка обладает кубической симметрией.

В дальнейшем рассмотрим эффективные магнитные поля, действующие на ядра Fe в ионных соединениях железа, и ограничимся здесь только несколькими замечаниями, касающимися полей в соединениях редких земель.

2.1. Роль симметрии кристаллического поля

В случае переходных элементов группы железа связь спин-орбита $3d$ электронов очень слаба и заполнение d орбит зависит от величины и симметрии кристаллического поля. Если расщепление орбит в кристаллическом поле мало по сравнению с обменным взаимодействием электронов, оболочка $3d$ заполняется согласно правилу Хунда. Это правило гласит: основной терм электронной конфигурации имеет наибольшее из возможных значений полного спина S и вследствие этого самое большое значение полного орбитального углового момента L . Векторы \vec{S} , \vec{L} складываются антипараллельно для оболочки, заполненной меньше чем половиной и параллельно для оболочки, заполненной больше чем половиной. Последовательность заполнения $3d$ оболочки показана на рис.1.

Кристаллическое поле устраняет вырождение орбит. В поле с кубической симметрией вырождение частично снимается, что проявляется в разности энергии между орбитами d_x и d_y , из которых первая может быть занята 6 электронами (трёхкратное вырождение), а вторая 4 электронами (двухкратное вырождение). В кристаллическом поле с более низкой симметрией, чем кубическая, появляется дальнейшее снятие вырождения орбит. В достаточно сильном кристаллическом поле и при низких температурах правило Хунда "не работает" и заполнением состояний $3d$ оболочки управляет теперь уже фактор Больцмана, $\exp(-W/kT)$, где W - разность

энергий уровней. Вследствие этого, могут появиться два эффекта, оказывающие влияние на магнитное поле, действующее на ядро:

1. Асимметрия распределения спинов электронов незаполненной оболочки вызывает появление дипольного вклада H_D .

2. Затухание полного орбитального углового момента электронов незаполненной оболочки приводит к исчезновению орбитального вклада H_L .

В случае редкоземельных элементов спин-орбитальное взаимодействие в незаполненной $4f$ оболочке значительно сильнее, чем в $3d$ оболочке переходных металлов группы железа. Вследствие сильной связи спина с орбитой, полный угловой момент электронной оболочки J является хорошим квантовым числом. В кристаллическом поле, обладающем высокой симметрией, или в случае вырождения Крамерса, имеющего место для нечетного числа электронов $4f$ оболочки, доминирующий вклад в магнитное поле на ядре дают орбитальные токи. Наблюдаемые магнитные поля достигают нескольких миллионов эрстед. Только для четного числа электронов $4f$ оболочки в сильных кристаллических полях с достаточно низкой симметрией ($2J+1$) - кратное вырождение электронного уровня снимается, выступает затухание полного углового момента J и исчезают как орбитальный, так и дипольный вклады во внутреннее магнитное поле.

2.2. Эффективные магнитные поля в ионных соединениях железа

Ион Fe^{3+} имеет электронную конфигурацию $3d^5$ и находится в состоянии $^6S_{5/2}$, обладающим сферической симметрией ($L=0$). В связи с этим орбитальный вклад в магнитное поле, действующее на ядро железа, равен нулю. В слабом кристаллическом поле тоже нет дипольного вклада и внутреннее поле обусловлено только контактным взаимодействием Ферми. Экстраполированные до $0^\circ K$ магнитные поля, наблюдаемые в соединениях трехвалентного железа, имеют очень близкие величины, группирующиеся около значения ~ 530 кэ. Так, например, в гематите Fe_2O_3 $H_{эф} = 510$ кэ /1/, в ферритах группы шпинелей $H_{эф}$ находится в пределах $500-550$ кэ /2/.

Вычисления контактного члена Ферми, проведенные Ватсоном и Фрименом [3] при помощи обобщенного метода Хартри-Фока, в котором принимается во внимание обменная поляризация, дают значение ~ 630 кэ, близкое к величине, наблюдаемой на опыте. В таблице I приведены вклады поляризации электронов последовательных S оболочек в магнитное поле, действующее на ядро трехвалентного железа.

Теоретические значения вкладов поляризации S оболочек в магнитное поле, действующее на ядро железа в ионе $Fe^{3+}[3]$:

Оболочка	H_F (кэ)
1	- 50
2	- 1790
3	+ 1210
поле	- 630

Принимая во внимание, что значения H_F , вычисленные для S оболочек, получаются путем вычитания двух очень больших чисел, представляющих вклады от электронов S^+ и S^- (для $1S$ оболочки эти значения порядка 10^9 э), согласие теории с опытом можно считать вполне удовлетворительным. Причиной небольших отличий экспериментальных значений для разных соединений трехвалентного железа являются по всей вероятности примеси ковалентных связей.

Ион Fe^{2+} имеет электронную конфигурацию $3d^6$. В слабом кристаллическом поле этот ион, согласно правилу Хунда, находится в состоянии 5D_4 вследствие того, что при $l = 2$ появляется орбитальный вклад H_L в магнитное поле, действующее на ядро. Если кристаллическое поле обладает кубической симметрией, местный электрон в результате обменного взаимодействия заселяет в равной степени все три вырожденные состояния dE . Такая смесь состояний сохраняет кубическую симметрию распределения спинов $3d$ электронов и не дает дипольного вклада в магнитное поле. Этот вклад появляется только при низкой симметрии кристаллического поля, которое снимает вырождение dE состояний и дает привилегию заселению местным электроном ниже лежащих энергетических состояний.

С другой стороны, снятие вырождения орбит кристаллическим полем с достаточно низкой симметрией приводит к отклонениям от правила Хунда. В результате этого происходит затухание полного орбитального момента и исчезновение вклада H_L в магнитное поле. Как видно, положение здесь намного сложнее, чем в случае ионов Fe^{3+} и поэтому предел значений наблюдаемых полей, действующих на ядра двухвалентного железа, значительно шире. Например, в $FeCO_3$ $H_{эфф} = 170$ кэ / 4 /, в FeF_2 $H = 330$ кэ / 5 /, а в магнетите Fe_3O_4 $H_{эфф} = 480$ кэ / 6 /.

3. Магнитная сверхтонкая структура χ линии

Результат взаимодействия магнитного момента ядра $\mu = g\mu_N I$ с магнитным полем H есть расщепление ядерного энергетического уровня со спином I на $2I+1$ компонент с энергиями

$$E = E^0 + g\mu_N H m_I, \quad (8)$$

где E^0 - энергия вырожденного уровня, g - ядерный гиромагнитный фактор, μ_N - ядерный магнетон, а $m_I = I, I-1, \dots, -I$ - магнитные квантовые числа.

В общем случае оба уровня, между которыми происходит γ - переход, расщеплены, что приводит к расщеплению γ - линии на несколько компонент. Число компонент зависит от значений спинов ядра в обоих состояниях и ограничено правилами отбора для излучения данной мультипольности. Чаще всего имеют место дипольные и квадрупольные переходы. Дипольными переходами управляет правило отбора $\Delta m_I = 0, \pm 1$, а квадрупольными - правило отбора $\Delta m_I = 0, \pm 1, \pm 2$. На рис. 2 показано расщепление уровней ядра ^{57}Fe , между которыми происходит мёссбауэровский переход $14,4 \text{ кэВ}$. Этот переход типа $M1$ и правило отбора $\Delta m_I = 0, \pm 1$ ограничивает до шести число компонент γ - линии. Разность энергий крайних компонент равна

$$\Delta E_{1-6} = \Delta E_0 + 3\Delta E = (g_0 + 3g)\mu_N H, \quad (9)$$

где g_0 - и g - ядерные гиромагнитные факторы основного и возбужденного состояний. Рис.3 представляет мёссбауэровский спектр линии $14,4 \text{ кэВ } ^{57}\text{Fe}$ в гематите Fe_2O_3 .

Достаточно знать гиромагнитный фактор одного из состояний, между которыми имеет место γ -переход, чтобы из измеренных расщеплений в мёссбауэровском спектре определить магнитное поле H , действующее на ядро (а также гиромагнитный фактор второго состояния). В случае ^{57}Fe расстоянию 1 см/сек между крайними компонентами γ линии соответствует магнитное поле 313 кэ .

Относительная вероятность переходов для отдельных компонент γ линии определяется выражением

$$\langle I_0 m_0 \langle LM | I m \rangle \rangle^2 F_L^M(\theta), \quad (10)$$

где $\langle I_0 m_0 \langle LM | I m \rangle \rangle$ - коэффициент Клебша-Жордана, описывающий связь векторов \vec{I}_0 и \vec{I} через поле излучения (LM) с мультипольностью 2^L и с магнитным квантовым числом $M = m - m_0$. Функция $F_L^M(\theta)$ описывает угловое распределение излучения относительно оси квантования, которая в данном случае является направлением магнитного поля, действующего на ядро.

В немагнитном образце происходит усреднение по направлениям магнитного поля и для дипольных переходов (случай ^{57}Fe интенсивности компонент имеют отношение 3:2:1, что видно из рис. 3. В случае намагнитченного образца отношение интенсивностей компонент γ - линии зависит от угла θ между направлениями наблюдения и намагнитченности. Функции $F_L^M(\theta)$ для дипольных и квадрупольных переходов приведены в таблице 2.

Функции углового распределения $F_L^M(\theta)$

Дипольные переходы $L = 1$	$F_1^0(\theta) = \frac{3}{2} \sin^2 \theta$ $F_1^{\pm 1}(\theta) = \frac{3}{4} (1 + \cos^2 \theta)$
Квадрупольные переходы $L = 2$	$F_2^0(\theta) = \frac{3}{2} \sin^2 \theta \cos^2 \theta$ $F_2^{\pm 1}(\theta) = \frac{1}{4} \cos^2 2\theta \cos^2 \theta$ $F_2^{\pm 2}(\theta) = \frac{1}{4} \sin^2 \theta (1 + \cos^2 \theta)$

Направление внутреннего магнитного поля, действующего на ядро относительно направления намагниченности образца, можно определить, наблюдая сдвиг компонент γ -линии, вызванный внешним магнитным полем. Если направление поля действующего на ядро антипараллельно направлению намагниченности, то внешнее магнитное поле понижает поле на ядре и расщепление γ -линии в мёссбауэровском спектре уменьшается.

4. Магнитные свойства гетита α -Fe₂O₃, исследованные при помощи эффекта Мёссбауэра

Примером применения эффекта Мёссбауэра для исследования свойств магнетиков могут быть измерения магнитных полей, действующих на ядра железа в гетите. Магнитная сверхтонкая структура линии $14,4 \text{ кэВ }^{57}\text{Fe}$ в гетите при комнатной температуре была обнаружена Хрынкевичем и Кульгавчуком [7]. Так как измерения макроскопической намагниченности образца α -Fe₂O₃ показали, что значение магнитной восприимчивости $\chi = 3 \cdot 10^{-5}$ типично для парамагнитных веществ, авторы пришли к выводу, что гетит при комнатной температуре является скомпенсированным антиферромагнетиком. Улучшение разрешающей способности измерительной аппаратуры позволило обнаружить, что в мёссбауэровском спектре при комнатной температуре существуют две компоненты с близкими интенсивностями, которые отвечают двум внутренним магнитным полям [8]. Определение значений этих магнитных полей показало, что на часть ядер в гетите действует поле $H_1 = (282 \pm 5) \text{ кэ}$, на часть ядер - поле $H_2 = (342 \pm 7) \text{ кэ}$. Мёссбауэровские спектры получены для порошкообразных поглотителей из минерального гетита и из синтетического α -Fe₂O₃ не отличаются друг от друга. Измерения магнитных полей при разных температурах в пределе от 77°K до 373°K показали неожиданный ход температурной зависимости [9] изображенной на рис.4. На рис.5 представлены примеры спектров, полученных для четырех температур образца. При низких температурах оба поля имеют очень близкие напряженности и их экстраполяция до 0°K дает совместное значение $(505 \pm 5) \text{ кэ}$.

По мере возрастания температуры магнитные поля падают, но их разность возрастает. Поле H_1 исчезает при температуре около $340^\circ K$, а поле H_2 — при температуре около $370^\circ K$. Этот результат показывает, что гетит обладает двумя точками Нееля. Это можно объяснить существованием четырех магнитных подрешеток. Одной паре подрешеток отвечает поле H_1 , второй паре — поле H_2 . Макроскопические магнитные моменты каждой пары подрешеток компенсируют друг друга и вследствие этого гетит обладает свойствами скомпенсированного антиферромагнетика в интервале температур до $370^\circ K$. Существование двух пар подрешеток может быть вызвано асимметричным расположением водорода по отношению к ионам кислорода, что могло бы привести к разности сверхобменного взаимодействия между парами ионов железа.

Результаты, полученные при помощи эффекта Мёссбауэра, нашли подтверждение в результатах измерений магнитной восприимчивости вблизи температур переходов. При температуре около $340^\circ K$ наблюдается аномалия зависимости $\chi(T)$ типичная для переходов второго рода. Аномалия вблизи температуры $370^\circ K$ тоже существует, но она менее заметна, что находится в согласии с поведением интенсивности компоненты мёссбауэровского спектра, отвечающей полю H_2 , которая быстро падает в пределе температур между двумя точками перехода.

За последнее время были опубликованы результаты измерений мёссбауэровских спектров гетита, проведенных Такадой и др. /I0/ и Росситером и Ходжсоном /II/. Эти авторы нашли только одно значение магнитного поля, что может быть вызвано меньшей разрешающей способностью и большими статистическими ошибками экспериментальных точек. Второй причиной разногласия их результатов с результатами краковской группы могла быть какая-то разница в химическом составе образцов. Краковской группой была проведена тщательная проверка чистоты употребляемых образцов. Рентгенографический анализ дал дифракционную картину, типичную для $\alpha\text{-FeOOH}$ и не обнаружил никаких примесей с точностью 5%. Измерения дефицита массы в процессе дегидратизации при переходе $\alpha\text{-FeOOH} \rightarrow \alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ показали незначительно большее (на $\sim 4\%$) содержание воды в минеральных образцах, чем $\frac{1}{2} \text{H}_2\text{O}$ на одну молекулу гетита. Но трудно предположить, что такой ничтожный избыток воды (одна молекула H_2O на 25 молекул гетита) был причиной появления второй пары магнитных подрешеток, дающих в мёссбауэровском спектре компоненты со сравнимой интенсивностью.

Литература

1. O.G. Kostner, A.W. Sunyar. *Phys. Rev Letters* 4, 412 (1960)
2. A.Z. Hrynkiwicz, D.S. Kulgancauk, K. Tomala *Acta Phys. Polon.* 28, 423 (1965)
3. R.E. Watson, A.J. Freeman, *Phys. Rev.* 123, 202 (1961)
4. K. Ono, A. Ito, *J. Phys. Soc. Japan* 19, 899 (1964)
5. S.K. Wertheim. *Phys. Rev.* 121, 63 (1961)
6. S.K. Wertheim *J. Appl. Phys.* 32, 1105 (1960)
7. А.Хрынкевич, Д.Кульгавчук. Сөзөщәне по эффеку Мессбауэра, Дубна, июнь 1962
8. A.Z. Hrynkiwicz, D.S. Kulgancauk. *Acta Phys.* 24, 689 (1963)
9. A.Z. Hrynkiwicz, D.S. Kulgancauk, K. Tomala, *Phys. Letters*. 17, 93 (1965)
10. T. Takada, M. Kiyama, Y. Bando, T. Nakamura, M. Shiga, T. Shiraijo, N. Yamamoto, Y. Endoh, H. Takaki. *J. Phys. Soc. Japan* 19, 1744 (1964)
11. M.J. Rossiter, A.E.M. Hodgson, *J. Inorg. Nucl. Chem.* 27, 63 (1965)

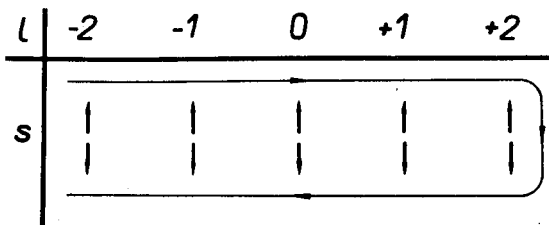


Рис.1 Последовательность заполнения $3d$ оболочки согласно правилу Хунда.

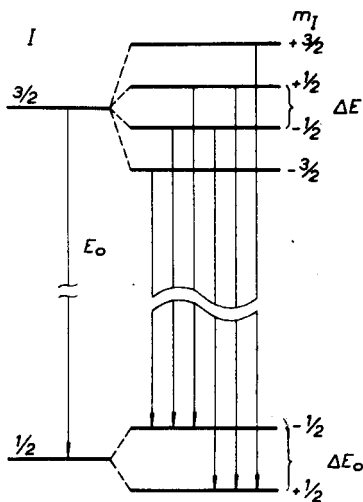


Рис.2 Расщепление уровней ядра ^{52}Fe в магнитном поле и компоненты γ -линии.

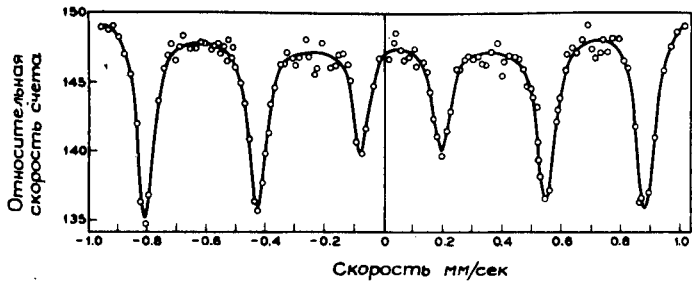


Рис.3 Мёсбауэровский спектр γ - линии $I_{4,4} \text{ к эВ } ^{57}\text{Fe}$ в гематите $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Al}$.

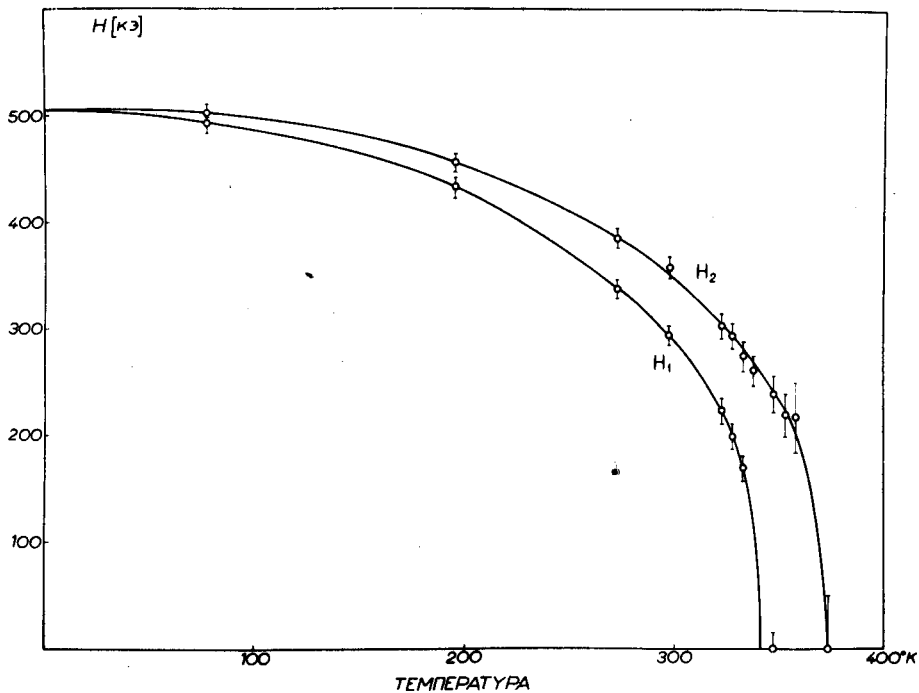


Рис.4 Температурная зависимость внутренних магнитных полей в гематите.

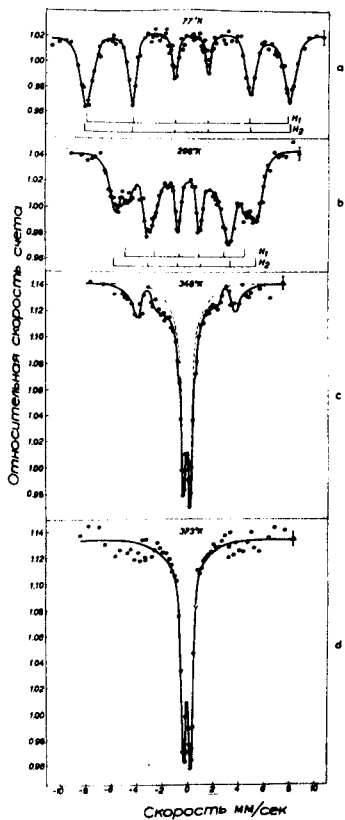


Рис.5 Примеры мёссбауэровских спектров гетита при разных температурах.

НАБЛЮДЕНИЕ МАГНИТНОЙ СВЕРХСТРУКТУРЫ В ЦИНКОВОМ ФЕРРИТЕ
МЕТОДОМ ЭФФЕКТА МЁССБАУЭРА

Е.Савицкий

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна * /

* / Постоянно работает в Ягеллонском университете, Краков.

Метод измерения с помощью эффекта Мёсбауэра эффективных магнитных полей, действующих на атомные ядра, нашел широкое применение в изучении структуры магнитных материалов. В частности, этот метод позволяет обнаруживать магнитные подрешетки и исследовать их температурное поведение в антиферромагнетиках. На примере гетита $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ эти возможности были показаны в работе А. Хрыкиевича и др. [1]

Ниже будут обсуждены некоторые результаты работы по изучению магнитной сверхструктуры ферритов типа нормальной шпинели.

В исследованном нами феррите ZnFe_2O_4 все магнитные ионы железа ($\text{Fe}^{3+}, 3d^5$) занимают октаэдрические узлы В гранецентрированной решетки ионов кислорода. Поскольку тетраэдрические узлы А заняты немагнитными ионами цинка ($\text{Zn}^{2+}, 3d^{10}$), отсутствуют сильные сверхобменные взаимодействия типа А- 0^2 -В. Как установлено [2], антиферромагнитное превращение при температуре около $9,5^\circ\text{K}$ связано со стабилизацией слабой косвенной связи в решетке В. Электронный механизм магнитного взаимодействия ионов железа в октаэдрических узлах в достаточной степени не изучен. Также не определена до сих пор спиновая структура В решетки [3]. Поэтому представляет интерес исследование этой системы методом эффекта Мёсбауэра.

Были произведены измерения спектров резонансного поглощения $\text{I}_{4,4}$ Кэв γ -лучей Fe^{57} в порошкообразном фильтре из цинкового феррита при низких температурах. Некоторые результаты показаны на рисунке I. Спектру при температуре $4,2^\circ\text{K}$ соответствует эффективное магнитное поле (470 ± 5) кэ. При температуре $5,5^\circ\text{K}$ мессбауэровский спектр расщеплен на две компоненты с близкими интенсивностями и значениями полей (435 ± 10) кэ и (390 ± 10) кэ.

Выше $9,5^\circ\text{K}$ феррит становится парамагнетиком и в мессбауэровском спектре наблюдается только квадрупольное взаимодействие со средним значением расщепления ($0,35 \pm 0,02$) мм/сек. Надо отметить, что в магнитных спектрах квадрупольное расщепление почти исчезает.

Величина химического сдвига при комнатной температуре ($0,57 \pm 0,02$) мм/сек и экстраполированное к нулевой температуре значение эффективного поля (530 ± 20) кэ подтверждают электронную конфигурацию $6S_{5/2}$ иона железа и его октаэдрическое положение.

Двойную магнитную структуру при температуре $5,5^\circ\text{K}$ можно объяснить следующим образом.

Октаэдрические узлы В образуют четыре взаимопроникающие гранецентрированные кубические решетки с ребром смещенные относительно друг друга на расстояние $\frac{1}{4}a\sqrt{2}$ в направлениях диагоналей граней куба. Вследствие значительных расстояний между ионами в одной подрешетке ($\frac{1}{2}a\sqrt{2} \approx 6\text{Å}$) обменным взаимодействием внутри подрешетки можно пренебречь. По теории Лабета и Киттеля [4] подрешетки скомбинированы в две идентичные пары. Это еще не объясняет двойного спектра, поскольку положения ионов железа одинаковы.

Однако в работе [5] предполагалось, что при низких температурах в кубической решетке цинкового феррита может происходить тетрагональная деформация. В таком случае, как показывает простой расчет [6] в приближении молекулярного поля, в решетке В имеются два стабильных спиновых состояния с энергиями

$$E_1 = -2M^2 \{ |J_{12}| - |J_{11}| \}$$

$$E_2 = -2M^2 \{ 2|J_{13}| - |J_{12}| - |J_{11}| \},$$

где J_{11}, J_{12}, J_{13} — константы обменных связей, а M — магнитный момент ионов. При расчете учитывалась тетрагональная деформация в направлении $\langle 001 \rangle$. Схема состояний ионов указана на рис. 2.

Добавим, что наличие такой нелинейной сверхструктуры может объяснить неудачу опытов по определению спиновой решетки методом нейтронной дифракции [3].

В зависимости от степени искажения (J_{13}/J_{11}) спиновые состояния неодинаково стабильны и можно ожидать двойного магнитного фазового перехода при температурах пропорциональных энергиям E_1 и E_2 . Это объясняет разницу магнитных полей при температуре $5,5^\circ \text{K}$, поскольку в менее связанном спиновом состоянии спин-спиновая релаксация более свободная, и в результате прецессии электронного спина уменьшение эффективного поля в этом состоянии более значительно.

Л и т е р а т у р а

1. A. Z. Hryniewicz, D. S. Kulgawczuk, K. Tomala
Phys. Letters, 17, 93 (1965).
2. J. B. Goodenough, *Magnetism and the Chemical Bond*,
Int. Publishers, New York-London 1963.
3. J. M. Hastings, L. M. Corliss, *Phys. Rev.* 102, 1460 (1956).
4. Y. Jaffet, C. Kittel, *Phys. Rev.* 87, 290 (1952).
5. M. Tachiki, K. Yosida, *Progr. Theor. Phys.* 17, 223 (1957).
6. K. P. Sinha, A. P. B. Sinha, *J. Phys. Soc. Jap. Suppl.* BI, 218 (1962).

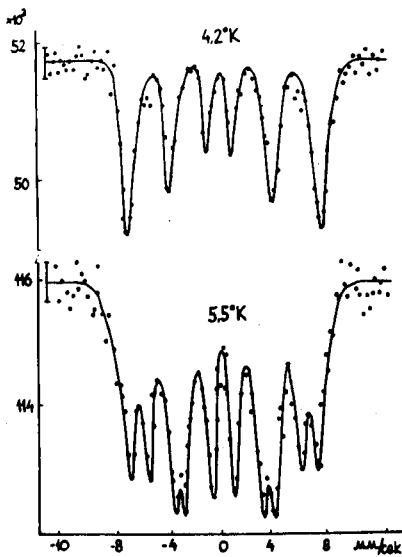


Рис.1. Мессбауэровские спектры в $ZnFe_2O_4$ при температурах $4,2^{\circ}K$ и $5,5^{\circ}K$.

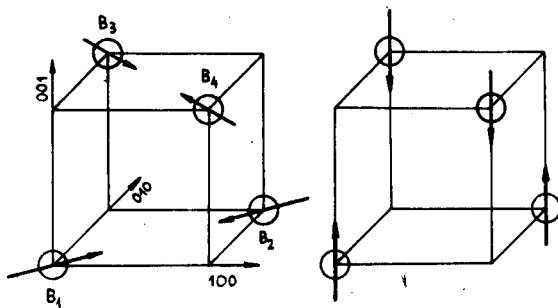


Рис.2. Спиновые состояния в решетке B.

ОБЗОР ПОСЛЕДНИХ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РАБОТ,
ПОСВЯЩЕННЫХ КРИТИЧЕСКОМУ РАССЕЯНИЮ НЕЙТРОНОВ

К. БЛИНОВСКИ

Институт ядерных исследований, Свэрк, Варшава

1. Введение

Уже сравнительно давно развиваются исследования в области структур и динамики твердого тела и жидкости с использованием нейтронов, а в настоящее время эти исследования ведутся в большем масштабе. Недавно начали применять нейтроны в исследованиях фазовых переходов, происходящих одинаково как в твердых, так и в жидких системах. Особенно интересными оказались исследования магнитных фазовых переходов второго рода. В дальнейшем будут кратко описаны некоторые работы в этой области, более полно будут представлены последние работы, известные автору из публикаций, либо выполненные с его участием.

Первым экспериментом, в котором было обращено внимание на аномально сильное рассеяние нейтронов вблизи температуры Кюри, являются измерения эффективного сечения рассеяния нейтронов в железе при высоких температурах, которые провели Касселс и Латем (1). Эти исследования начались с целью проверки теории Вьенштока, описывающей неупругое рассеяние нейтронов в поликристаллах. Касселс и Латем обратили внимание на систематически значительные отклонения от теории для измерений в более высоких температурах и для больших длин волны. Найденное ими эффективное сечение неупругого рассеяния при 800° К значительно больше ожидаемого. Авторы не смогли объяснить такое большое несогласие.

В более поздних исследованиях, касающихся нейтронных измерений эффективных сечений железа, Кэ и Палевски (2), а также независимо от них для железа и никеля Сквайрс (3) установили, что эффективное сечение достигает максимальной величины точно при температуре Кюри, что свидетельствует о магнитном происхождении рассеяния. В это же самое время

Мак-Рейнольдс и Ристе (4) тоже заметили похожий эффект в магнетите, правда, их исследования касались, главным образом, упругого магнитного отражения при разных температурах, но кроме этого авторы обратили также внимание на диффузионное рассеяние под малыми углами, появляющееся вблизи температуры Кюри. Для измерений этой составляющей использовался приблизительно моноэнергетический пучок нейтронов с длиной волны 1.08 \AA .

Диффузное рассеяние наблюдалось по схеме, представленной на рисунке 1.1. Образец магнетита устанавливался в моноэнергетическом пучке под брегговским углом, затем из этого положения образец поворачивался на достаточно большой угол так, чтобы брегговское отражение не имело места. Результаты измерений показаны на рис. 1.2. Температурная зависимость диффузного рассеяния показана на рис. 1.3. Мак-Рейнольдс и Ристе интерпретируют свои результаты, основываясь на теории Ван-Хова. Рисунок 1.4. является иллюстрацией, представляющей поведение систем спинов по мере возрастания температуры. Теория Ван-Хова, представленная на этом семинаре профессором Палом, объясняет появление интенсивного рассеяния нейтронов существованием флуктуации намагниченности вблизи температуры магнитного перехода.

Нейтроны на таких флуктуациях, рассеиваются таким же образом как и свет, рассеиваемый на флуктуациях плотности в системе жидкость - пар, доведенной до критического состояния. Как сообщил профессор Пал, Ван-Хов разработал теорию критического магнитного рассеяния (6), аналогичную теорию, с помощью которой Орштейн и Цернике описали критическое рассеяние света в газах (7). Они обнаружили осуществление тесной зависимости между корреляцией элементарных магнитных моментов с энергией и с угловым распределением рассеянных нейтронов.

Герш, Шалл и Вилкинсон (8), а также Лауд (9) провели исследования для железа, а Мак-Рейнольдс и Ристе (10) - для антиферромагнитной окиси кобальта с целью проверки теории Ван-Хова.

Упомянутые, а также последующие эксперименты, проведенные в более позднее время, показали, что рассеяние нейтронов может предоставить ценную информацию о явлениях, возникающих в упорядоченной магнитной системе вблизи критической точки.

Параллельно с развитием новых экспериментальных методов наступил значительный прогресс в области теории магнетизма. Работы, особенно интересные для проблемы магнитных явлений, возникающих в критической точке, выполнили Домб и Сайкс (11), Гаммель, Маршалл и Морган (12). Проведенные ими вычисления магнитной восприимчивости для модели Гейзенберга выше точки Кюри показали пропорциональность восприимчивости $(T - T_c)^{-\frac{1}{3}}$, а не $(T - T_c)$, как это было показано в современных теориях.

Мори, Кавасаки (13) и Коциньски (14) опубликовали работы по процессам релаксации в критической области, а в последнее время Фишер (15) продискутировал ограниченность теории Орштейна-Цернике в непосредственной близости температуры Кюри.

Макро и др. (16) в 1962 году выполнили исследования, которые указывают на степенную зависимость $(T - T_c)^{\frac{1}{3}}$ для железа, это также подтверждают Ноукс и Аррот (17), которые недавно произвели измерения восприимчивости. Результаты работ Макро, касающиеся временных процессов флуктуации намагниченности, не подтверждают предвидений Ван-Хова но, однако, согласуются с результатами вычислений КОЦИНЬСКОГО (18).

Целью исследований критического рассеяния нейтронов в железе и хrome, о которых в дальнейшем будет идти речь более подробно, является получение по мере возможности самых точных результатов, позволяющих сравнить их с теоретическими предположениями.

II. Исследование критического рассеяния в железе

I. Описание эксперимента

В исследовательском центре РИС (Дания) Пасселл, Блиновски, Брун и Нильсен (19) выполняли эксперимент на тяжеловодном реакторе DR3 типа PLUTO.

Для измерений был использован спектрометр нейтронов, показанный на рис.1.5. Источником нейтронов служил водный рассеиватель, помещенный в горизонтальном сквозном канале вблизи активной зоны. Поток нейтронов, падающий на рассеиватель, порядка $6 \times 10^{13} \text{ н/см}^2 \text{ сек}$. Рассеянные нейтроны проходили через бериллиевый фильтр и падали на монокристаллы слюды, отражающий только нейтроны с длиной волны 4.28 \AA . Принимая во внимание структуру железа, авторы использовали эту длину волны во избежание каких-нибудь брегговских отражений в образце. Моноэнергетический пучок, пропущенный через коллиматор с угловой расходимостью $25'$, падал на образец, находящийся в вакуумной печи.

Образец, изготовленный из поликристаллического железа высокой чистоты, имел форму цилиндра диаметром 20 мм. Учитывая возможность многократного рассеяния, авторы выполняли также измерения с более тонкими образцами толщиной 12 и 4.3 мм. Влияние толщины образца на результат измерений было незначительное. Детектором служил счетчик, не имеющий мёртвого объема. Счетчик был наполнен обогащенным $B^{10}F_3$ до 96% и обладал эффективностью 98% для нейтронов энергии 5 mev . Счетчик вместе с коллиматором помещался на расстоянии 2.8 м от образца на тележке, дающей возможность производить измерения для разных углов рассеяния.

Для анализа энергии рассеянных нейтронов был применен монокристалл цинка. Спектр падающих нейтронов определялся также при помощи механического прерывателя нейтронов методом времени пролета. С целью улучшения коллимации было исключено полное отражение нейтронов на стенках коллиматоров, для чего перегородки в этих коллиматорах были сделаны из титановых пластинок.

Особое внимание было обращено на контроль температур образца. От постоянства температуры во времени и по образцу зависит в значительной степени величина наблюдаемого эффекта.

Подогрев образца происходил в вакуумной печи с молибденовой спиралью, намотанной на трубу из окиси магния. Греться спираль состояла из трех независимо питающихся частей для возможности уменьшения нежелательного градиента. Вокруг спирали были помещены два цилиндрических тепловых экрана из молибденовой фольги. Измерения температуры образца производились при помощи трех калиброванных термпар Pt-Pt, 10% Rh, расположенных по одной в верхней части образца, в середине и снизу.

Для стабилизации температуры употреблялась термпара хромель - вольфрам, подключенная к контрольно-питающей электронной системе. Точность стабилизации составляла $\pm 0,1^\circ\text{C}$. Благодаря тому, что интенсивность рассеянных нейтронов имеет очень острый максимум в точке Кюри, градиент температуры определялся по положению этого максимума от разных частей образца. Показания термпар многократно контролировались во время

продолжительных измерений, причем температура Кюри принималась за реперную точку. Холодные стержни термопар закреплялись в медном блоке и находились в сосуде Дьюара с тающим льдом. Находящаяся в воде мешалка предохраняла появление незначительных флуктуаций температуры выше 0°C . Внешний алюминиевый кожух печи имел водяное охлаждение. Самая высокая температура, достигнутая в этой печи, равнялась 1000°C .

Результаты измерений, оодержащие угловую и температурную зависимости интенсивности рассеянных нейтронов, показаны на рис. I.6. Каждая из кривых соответствует определенному углу рассеяния. Измерения проводились в угловых промежутках через каждые $15'$ в пределах от 1° до $3\frac{1}{2}^{\circ}$. В температуре Кюри этот предел был увеличен до 9° . Все измерения выше $T - T_c = 2^{\circ}$ производились с полным пучком, т.е. с пучком высотой 6 см, который пропускал второй коллиматор. Вблизи температуры Кюри, где зависимость интенсивности от температуры очень сильная, высота пучка сокращалась до 1 см, главным образом для того чтобы избежать неточностей, вызванных градиентом температуры.

Спектр падающих (а), а также рассеянных нейтронов (б) для $\theta = 2,5^{\circ}$, $\Delta T = 2^{\circ}$ показан на рис. I.7. Анализ энергии рассеянных нейтронов проводился при двух температурах на 2° и 18°C выше T_c , в угловом интервале от 2° до 4° . Измерение производилось при использовании спектрометра с монокристаллом цинка. Насколько этот способ был удовлетворительным для исследования спектра рассеянных нейтронов, настолько он оказался непригодным для анализа падающего пучка, так как результат в значительной степени зависел от того, находился ли анализируемый кристалл в параллельном или же непараллельном положении к монохроматору. Это затруднение было преодолено измерением спектра падающих нейтронов методом времени пролета.

2. Обработка результатов

А. Определение длины корреляции χ_c^{-1} и коэффициента диффузии Λ на основании теории Ван-Хова.

Принимая, что критическое рассеяние является упругим, можно на основании проведенных измерений, а также формулы для эффективного сечения легко получить температурную зависимость длины корреляции:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{\gamma e^2}{mc^2}\right)^2 \frac{2NS(S+1)}{3} |f(K)|^2 \frac{1}{\gamma^2(K^2 + \chi_c^2)}. \quad (\text{I.1})$$

Так как анализ энергии нейтронов (рис. I.7) не позволяет применить статическое приближение, то следует результаты для χ_c , полученные на основании формулы (I), принять как

приближенные, а правильные вычисления провести, основываясь на более точной формуле:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{rc^2}{mc^2}\right)^2 \frac{2NA_S(S+1)}{3\pi m k_0} |f(K)|^2 \int \frac{k^2 dk}{r_1^2(K^2 + \chi_1^2)} \frac{\Lambda K^2}{\Lambda^2 K^2 + \omega^2} \quad (1.2)$$

Пользуясь вышеизложенной методикой, сначала определим длину корреляции как функцию от температуры, пользуясь статическим приближением. Величины χ_1 для соответствующих $\Delta T = T - T_c$ получим путем экстраполяции линейных отрезков кривых до пересечения с осью θ^2 рис. I.8. Результаты представлены в таблице I.

I. Дальнейшей обработкой результатов являлось определение величины Λ из анализа спектра нейтронов, с последующим более подробным вычислением χ_1 с использованием модифицированной формулы, которую вывели Герш, Шалл и Вилкинсон (8):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \text{const} \frac{|f(K)|^2}{r_1^2} \int_{-\infty}^{\infty} d\alpha (1+\alpha)^2 \frac{1}{\alpha + (1+\alpha)\theta^2 + \beta^2} \frac{\delta[\alpha^2 + (1+\alpha)\theta^2]}{\delta[\alpha^2 + (1+\alpha)\theta^2 + \alpha^2(1+\frac{1}{2}\alpha)^2]}$$

$$\text{где } \alpha = \frac{k-k_0}{k_0}, \quad \beta = \frac{\chi_1}{k_0}, \quad \delta = \frac{m\Lambda}{\hbar}, \quad d\alpha = \frac{1}{k} dk \quad (1.3)$$

Параметр Λ находился путем наилучшей подгонки расчетного распределения энергии для экспериментальных результатов (рис. I.9). Теоретические спектры вычислялись путем учета первичного спектра и формулы для эффективного сечения (I.3).

На рис. I.10, представляющем зависимость полуширины $\Delta\lambda/\lambda$ от квадрата угла рассеивания, сравнивается несколько экспериментальных результатов с результатами вычислений. Для двух серий измерений, выполненных при $T - T_c = 2^\circ\text{C}$ и 18°C , получено из самого лучшего подгона $\frac{2m\Lambda}{\hbar} = 11 \pm 0.6$. Вычисления проводились методом итераций. Сначала находим Λ , считая величину χ_1 полученной из статистического приближения, затем, вставляя найденное Λ в формулу (I.3), искали χ_1 , дающую наилучшее согласование эффективного сечения для соответствующей кривой на рис. I.8. После двукратной итерации были получены такие значения параметров χ_1 и Λ , что небольшое изменение одного из них не влияло значительно на значение другого параметра. На рис. I.9 и I.10 представлены конечные результаты.

Приняв вычисленное значение Λ на основании формулы (I.3), в угловые распределения интенсивности с подгонкой их к экспериментальным точкам (рис. I.8), методом наименьших квадратов получено значение χ_1 и $r_1^2(T)/r_1^2(T_c)$. Результаты для χ_1^{-1} представлены в таблице I, а график отношения $r_1^2(T)/r_1^2(T_c)$ показан на рис. I.11.

Б. Определение длины корреляции на основании теории Фишера.

Добавочный анализ результатов проведен на основании теории Фишера (15), который недавно обрел внимание на ограничения теории Ориштейна-Цернике и оспаривал корректность

функции корреляции в непосредственной близости к температуре Кюри. Корректное выражение функции корреляции дается формулой

$$\gamma'_R(0) = \frac{v_0 S(S+1)}{4\pi r_0^2} \frac{\exp(-\chi_0 R)}{R^{1-\varepsilon}} \quad (I.4)$$

Введение функции корреляции в этом виде приводит к формуле для эффективного сечения, в которой коэффициент $\frac{1}{k^2 + \chi_0^2}$ заменен коэффициентом $\frac{1}{(k^2 + \chi_0^2)^{1-\frac{1}{2}\varepsilon}}$, где ε является малым числом порядка 0,1. Пользуясь выражением для эффективного сечения, приведенного Фишером, проведены вычисления тем самым методом, как поступали при использовании теории Ван-Хова. В вычислениях принято ранее найденное значение параметра диффузии $\Lambda_1 = 11$. Параметр ε был определен из поведения до изгиба теоретических кривых, подогнанных под экспериментальные точки на рис. I.8. Величина χ , не влияя на изгиб, наблюдаемый на кривой зависимости (интенсивность)⁻¹ от квадрата угла рассеивания. Самое хорошее согласование к форме всех линий получено для $\varepsilon = 0.15$. Значения длины корреляции представлены в таблице I.

3. Дискуссия и выводы.

Возможность сравнения результатов, полученных в описанном эксперименте, с результатами других работ является очень ограниченной ввиду небольшого количества аналогичных работ, и из-за различных математических методов обработки результатов.

Тем не менее с целью представления результатов разных работ на рис. I.12 нанесены также значения длины корреляции, которые получили JACROT и др. (16), а также Гэрш, Шалл и Вилкинсон (8). Разница, как видно на рисунке, довольно значительная.

Между длиной корреляции спинов и магнитной восприимчивостью существует непосредственная зависимость: $(\chi, r_c)^2 = \frac{\chi_c}{\chi}$. Была сделана попытка найти объяснение такому большому несоответствию результатов путем сравнения магнитной восприимчивости для железа, измеренной для температур выше T_c . Оказывается, что и в этой области температур расходимость результатов гораздо больше точности измерений. Результаты, которые получили Саксмит и Пирс (20), отличаются на 6% от результатов Арасс и Миллера (21) и на 30% от результатов Поттера (22). Можно предположить, что это расхождение было вызвано не различием измерительной методики, а возникло вследствие специфических свойств различных образцов. Например, на магнитную восприимчивость могут оказать некоторое влияние несовершенства кристаллической решетки; парамагнитные загрязнения также оказывают похожее влияние на магнитную восприимчивость.

Согласно теоретическим работам (II, I2) $(\chi, r_c)^2$ должно быть пропорционально $(T - T_c)^{3/2}$. Как видно на рис. I.13, график $(\chi, r_c)^2$ в виде зависимости от $(T - T_c)^{-1/2}$ дает для $(T - T_c) > 5^\circ\text{C}$ $\alpha = 1.30 \pm 0.04$.

При $\varepsilon = 0.10, 0.15, \text{ либо } 0.20$ применение исправленной формулы Фишера практически дает такой же самый результат, а именно $\alpha = 1.29 \pm 0.4$. Неизвестна причина отклонения от этой зависимости для температур близких к точке Кюри. Правда, Фишера предвидел появление такого рода отклонений в зависимости $\propto T^{4/3}$, однако мы не можем с полной уверенностью утверждать, что наши результаты являются подтверждением теории Фишера. Равным образом наблюдаемое отклонение может быть вызвано различными экспериментальными условиями. Во-первых, по мере приближения к температуре Кюри значительно растет значение угловой расходимости пучка нейтронов и рассчитанные поправки на угловую разрешающую способность оказывают влияние на конечные результаты. Во-вторых, даже очень малый градиент температуры в образце, либо появления многократного рассеяния вблизи температуры Кюри могут оказать влияние на результаты измерений.

Оказалось интересным, что экстраполяция прямой части кривой на рис. 1.13 до пересечения с вертикальной осью указывает на существование небольшой, но конечной величины χ_c .

К сожалению, недостаточная точность измерений не позволяет считать этот вывод твердо установленным фактом.

III. Исследование критического рассеяния в хроме

Обоснование эксперимента.

Интересующие нас и, собственно говоря, до сих пор еще не выясненные магнитные свойства хрома были причиной того, что после выполнения эксперимента с железом было решено исследовать критическое рассеяние нейтронов в этом металле. За последние годы антиферромагнитной структуре хрома посвящено много теоретических и экспериментальных работ с применением метода дифракции нейтронов к единичному кристаллу. Не входя в подробности этих работ, можно их, согласно основным выводам, классифицировать на две группы. К первой, более многочисленной, принадлежат те работы, которые для интерпретации экспериментальных результатов пользуются моделью магнитной структуры с локализованными моментами (1-6); ко второй группе относятся работы, объясняющие магнитные свойства хрома при помощи волн плотности поляризации спинов (7,8).

Есть несколько аргументов против принятия теории локализованных спинов в пользу второй теории, нетипичной для области магнетизма. Эти аргументы подробно обсудил Оверхаузер (7) в своей теоретической работе, Видкинсон и др. (9) констатировали отсутствие парамагнитного рассеяния нейтронов как ниже, так и выше температуры Нееля, которое должно появиться в случае локализованных спинов - это является одним из вышеуказанных аргументов. Также в пользу теории волн плотности поляризации спинов убедительно свидетельствует изменение энтропии. Принимая для локализованных спинов величину около половины магнетона Бора на атом, имеем, что на возрастание энтропии приходится 0,7

калории на градус при переходе через точку Нееля (38.5°C). Эта величина характеризует значительное изменение энтропии, которое должно легко наблюдаться экспериментально. Попытки обнаружить это, которые предпринял еще в 1953 году Гольдман (10), отчетливо показали отсутствие такого большого изменения. Выполненные позднее более подробные измерения теплоемкости вблизи критической температуры показали, что изменение энтропии в той точке равнялось только 0.0044 кел/градус (11). Это значение можно легко объяснить с помощью теории Оверхаузера .

Учитывая неразрешенную проблему магнитной модели хрома, интересно исследовать критическое рассеяние нейтронов и сравнить его с результатами, полученными для железа.

2. Магнитная структура хрома по теории волн плотности спинов.

Хром имеет объемноцентрированную кубическую структуру с постоянной решеткой $a = 2.88$.

Переход из антиферромагнитного состояния в парамагнитное наступает при температуре около 39°C . Нейтронные дифракционные исследования показали появление ниже температуры Нееля, спутанных отражений, соответствующих в обратной решетке направлениям $[100]$ к точкам с координатами $Q_1 = (0.96; 0; 0)$ и $Q_2 = (1.04; 0, 0)$. Согласно требованиям симметрии подобным образом появляются еще по два спутанита при оставшихся двух направлениях Y и Z . Таким образом, каждая точка кристаллографической обратной решетки окружена шестью магнитными спутанитами, отделенными от нее на $\frac{1}{25} \tau$. Согласно теории Оверхаузера, магнитное упорядочение в хrome основывается на существовании волновой плотности поляризации электронов проводимости с периодичностью, не соответствующей постоянной решетки. Волновой вектор \vec{Q} плотности намагниченности определен диаметром поверхности Ферми, а именно $Q = 2k_F$. Плотность намагниченности для линейных волн выражается формулой

$$\vec{M}(\vec{r}) = n \mu \vec{E} P_0 \sum_{\vec{a}} \exp(i \vec{G} \cdot \vec{r}) \cos(\vec{Q} \cdot \vec{r}),$$

П.1.

где $n = k_F^3 / 3\pi^2$, μ - является магнетоном Бора, \vec{G} - вектор обратной решетки, а f_a - соответственный магнитный формфактор, P_0 - является величиной, а \vec{E} - направлением поляризации. Эта формула относится к так называемой "гибкой" модели (*flexible spin model*), в которой плотность поляризации спинов имеет в каждой элементарной ячейке точно такое же поведение, как волна плотности спинов для электронного газа.

В крайней модели, так называемой "твердой" модели (*rigid*), волна плотности поляризации сосредоточена вокруг иона в центре элементарной ячейки. Поэтому центральная часть волны плотности спинов полностью определяет амплитуду и направление поляризации. В этом случае, как показал Оверхаузер, плотность намагниченности выражается формулой:

$$M(\vec{r}) = \mu \bar{E} \rho_0 \sum_L (u(\vec{r} - \vec{L}))^2 \cos(\vec{Q}\vec{L}).$$

П.2.

Суммирование производится по точкам кристаллографической решетки, а коэффициенты Фурье преобразования функций (2) имеют вид:

$$\bar{M}_K = \mu \bar{E} f_K \sum_L \exp(2\pi i \vec{K}\vec{L}) \cos \vec{Q}\vec{L},$$

П.3

где $\vec{K} = 2\pi\vec{G} \pm \vec{Q}$ является вектором рассеяния. Принципиальная разница между формулами, описывающими обе модели, объясняется существованием разных магнитных факторов f_G и f_K . Для "гибкой" модели значение магнитного фактора f_K зависит от вектора обратной решетки \vec{G} , а не от вектора рассеяния, как в "твердой" модели. В зависимости от длины \vec{Q} , сателлиты точки \vec{G} могут лежать как ближе, так и дальше от неё.

Если применить "гибкую" модель к хрому, тогда точка Q (0,96,0,0) является сателлитом точки (0,0,0), а точка Q_2 (1,04,0,0) - сателлитом точки (2,0,0).

Если обе точки Q_1 и Q_2 лежат вблизи точки (1,0,0), то соответственные им интенсивности отражения нейтронов должны различаться на порядок величины. Принимая во внимание пропорциональность магнитного отражения величине f_G^2 , считаем, что сильными отражениями на волнах плотности спинов в "гибкой" модели являются сателлиты точки (0,0,0). Другие отражения из-за малых f_G^2 могут быть даже трудно заметными.

Интенсивности сателлитных отражений в "твердой" модели не будут дифференцированы, так как значение магнитного фактора в этом случае зависит от вектора рассеяния. Если эта модель применима к хрому, то, опуская вопрос о поляризации, следовало бы ожидать превышение порядка 10% интенсивности сателлитов Q_1 над интенсивностями сателлитов Q_2 .

Дифракционные нейтронные измерения показали (рис. П. I d), что разница интенсивностей для обоих сателлитов является несколько большей и в итоге составляет 30%. Оверхаузер в своей теории говорит, что антиферромагнетизм хрома может следовать из посредственной модели, что кажется вероятным, ибо обе представленные гипотезы являются идеализированными и описывают крайние случаи воля плотности спинов.

3. Описание эксперимента

Беррум-Миллер, Блиновски, Маккинтosh и Браун (II, I2) выполнили эксперимент на том же самом спектрометре нейтронов и при использовании других добавочных устройств, которыми пользовались при исследованиях критического рассеяния нейтронов в железе. Некоторая модификация установки по отношению к предыдущей касалась расстановки образца на оси анализирующего спектрометра. Это было вызвано потребностью проведения измерений вдоль определенных кристаллографических направлений. Благодаря независимому повороту столика

образца и плеча спектрометра можно было исследовать дифракционные эффекты, происходящие в обратной решетке, вблизи точки $(1,0,0)$ и $(0,1,0)$ в произвольных направлениях.

Моноэнергетический пучок нейтронов с длиной волны $\lambda = 0,855 \text{ \AA}$ был получен методом отражения от кристалла цинка. Для устранения примеси второго порядка, которая составляла несколько процентов, перед коллиматором счетчика был помещен фильтр из эрбия.

Температура печи стабилизировалась с точностью $\pm 0,1^\circ\text{C}$ при помощи той же самой установки, которой пользовались в измерениях с железом.

4. Измерения

Результаты измерений, проведенных при комнатной температуре (23°C), показаны на рис. П. I. На рисунке видны спутники, принадлежащие соответствующим точкам обратной решетки, тоже показанные на этом же рисунке. График „*rocking curves*“ показывает ход интенсивности магнитных отражений вдоль направлений $[100]$ и $[010]$. Эти кривые показывают, что амплитуда волны намагниченности поперечной поляризации является большей для $[100]$, чем для $[010]$. Вероятно, причиной этой асимметрии было то, что исследуемый кристалл хрома был получен методом проковки под напряжением и частично сохранные внутренние напряжения вызвали образование несимметричного внутреннего магнитного поля. Такая интерпретация согласуется с результатами, которые получили Монтальво и Маркус (13), исследуя магнитные свойства хрома, охлажденного ниже точки Нееля в сильном магнитном поле. Принимая во внимание результаты этой работы было проведено получение магнитной анизотропии в хrome путем нагрева его до температуры выше температуры Нееля, а затем охлаждения до комнатной температуры в присутствии наружного магнитного поля. Поле напряженностью около 1 kOe прикладывалось параллельно к направлению $[100]$. Сравнение интенсивностей для обоих отражений (100) и (010) показало уменьшение первого из них на 8%. После вторичного нагрева выше T_N и охлаждения без поля до той же самой температуры, интенсивности вернулись к своим старым значениям. Дополнительные исследования для более подробного изучения этого эффекта не были проведены, поэтому интерпретация его весьма затруднительна. Например, Ширен и Такей (4), проводя аналогичные измерения с полем 10 kOe , не заметили никакого изменения в интенсивности.

На основании измерений магнитных отражений ниже точки Нееля (рис. П. I) методом наилучшей подгонки кривых, вычисленных для магнитных отражений, были определены: аппаратная функция разрешения, магнитные факторы, степень поляризации и фактор, учитывающий деформацию кубической симметрии. На рисунке видно, что получено хорошее согласие для измерений проведенных вблизи точки (100) . Согласованность с измерениями, относящимися к точке (010) , была неудовлетворительной, причиной этому могло быть несколько косо положение кристалла, после оборота для проведения измерений вокруг точки (010) , в котором

нейтроны немного рассеивались на другой части образца. Измерения, выполненные для температур, начиная от 39°C вплоть до 400°C, отчетливо показали появление критического рассеяния. Результаты, полученные для точки обратной решетки (100) в направлении 010, показаны на рис. П.2. Похожие измерения, относящиеся к соседней точке (010) обнаружили, что выше точки Нелля магнитная анизотропия исчезает.

5. Эффективное сечение критического рассеяния.

Малая интенсивность в критическом рассеянии не позволила провести анализ энергии рассеянных нейтронов. Итак, не констатировано, в какой степени рассеяние нейтронов в хrome является неупругим. Основываясь, однако, на результате исследований с железом, мы пользовались статистическим приближением, принимая, что пренебрежение неупругости ведет к результатам, приводящим в наилучшем случае к несколькопроцентной ошибке.

Формула эффективного сечения в статическом приближении для критического рассеяния вблизи точки обратной решетки имеет вид суммы, растягивающейся на 6 сателлитов вокруг конца вектора $\vec{\tau}$:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \sum_{\vec{\tau}_m} \frac{B_{\vec{q}}(\vec{\kappa}) f^2(\vec{\tau}_m - \vec{q})}{r_i^2 [(\vec{\kappa} - \vec{\tau}_m) + \chi_i]^2} \quad (П.4)$$

где $\vec{\tau}_m = \vec{\tau} + \vec{q}$, $f(\vec{\tau})$ является магнитным формфактором для "гибкой" модели. Согласно теории Оверхаузера, параметр f имеет промежуточное значение между теми, какие предвидят обе модели. Факторы $B_{\vec{q}}(\vec{\kappa})$ учитывают между другими амплитуды и поляризацию волн плотности спинов.

6. Результаты

Пользуясь формулой (П.4), при помощи вычислительной машины проведено сравнение теоретических кривых с результатами измерений. Свободным параметром, по которому идет подгонка, являлся χ_i , то есть величина обратная искомой длине корреляции спинов.

На рис. П.3 показаны теоретические кривые, дающие нам лучшее приспособление к экспериментальным точкам. Вычисления значения χ_i было проведено для всех экспериментальных данных на рис. П.2, однако для большей ясности на рис. П.3 показано только несколько кривых. Как было предвидено, χ_i оказалось в пределах точности эксперимента не зависящей от температуры.

Найдено, что температурную зависимость χ_i можно представить в виде:

$$\chi_i^2 \approx (T - T_N)^{1.1 \pm 0.1}$$

Кроме того, длина корреляции спинов имеет конечное значение в точке переходе, что здесь видно более отчетливо чем для железа.

7. Выводы.

Представляется интересным сравнение между температурной зависимостью интенсивности рассеянных нейтронов в хrome с аналогичными результатами для железа, показанные на рис. II и 4. Критическое рассеяние в железе исчезает очень быстро по мере возрастания температуры. Иначе говоря, сильные флуктуации намагниченности, ответственные за критическое рассеяние в железе, выступают в небольших пределах температуры выше точки Кюри. Переход из ферромагнитного состояния в парамагнитное наступает принципиально в пределах до 100°C .

Аналогичные флуктуации в хrome, связанные с переходом антиферромагнитной структуры в парамагнитное состояние, исчезают более умеренно, как это видно из температурного хода интенсивности. Такой медленный переход связан с небольшим изменением энергии, которую предвидел Оверхаузер для модели волн плотности поляризации спинов в хrome. Как было сказано ранее, это изменение является по меньшей мере на два порядка меньше величины изменения энергии для магнитной структуры с локализованными магнитными моментами.

Sumeparypa.

1. J.M. Cassels, R. Latham . Phys. Rev. (1948) 74, 103. Proc. Ph. Soc. A 65, 241 (1952)
2. D.J. Hughes, H. Palerksy . Phys. Rev. 92, 202. (1954)
3. G.L. Sgutzas . Proc. Phys. Soc. A 67, 240 (1954).
4. A. W. McReynolds, T. Riste . Phys. Rev. 95, 1161 (1954).
5. L. Van Hove . Phys. Rev. 93, 268 (1954)
6. L. Van Hove . Phys. Rev. 95, 249, 1374 (1954)
7. L. S. Ornstein, P. Zernike . Proc. Acad. Sci. Amsterdam . 17, 793 (1914).
8. H. A. Gersh, C.C. Shull, M.K. Wilkinson . Phys. Rev. 103, 525 (1956)
9. R. D. Lowde . Rev. Mod. Phys. 30, 69 (1958)
10. McReynolds, T. Riste .
11. C. Domb, M.P. Sykes . Phys. Rev. 128, 168 (1962)
12. J.L. Gamel, W. Marshall, L. Morgan - Proc. Roy. Soc. A. 275, 257 (1963)
13. H. Mori, K. Kawasaki . Progr. Theor. Phys. 27, 529 (1962)
14. J. Kosinski . Acta Phys. Pol. XXIV, 243 (1963)
15. M. Fisher - J. Math. Phys. 5, 944 (1964)
16. B. Jacrot, J. Konstantinovic, G. Parotte, D. Cribier.
Symposium on Inelastic Scattering of Neutrons in Solids
and Liquids, Chalk River. 1962
17. J.E. Noakes, A. Orrot - J. Appl. Phys. 35, part 2, 931 (1964)
18. J. Kosinski . J. Phys. Chem. Sol.
19. L. Passell, K. Blinowski, T. Brun, P. Nilson.
J. Appl. Phys. 35, 933 (1964) . Phys. Rev. (1965)

20. W. Sucksmith, R.R. Pearce . Proc. Roy. Soc. A 167, 189 (1938)
21. S. Azass, D.E. Miller . J. Appl. Phys. 31, 986 (1960)
22. H.H. Potter . Proc. Roy. Soc. A 146, 362 (1934)

II

1. L.M. Corliss, J.M. Hastings, R.J. Weiss . Phys. Rev. Lett. 3, 211 (1959)
2. B.B. Burnol, B.C. Jacobson, H.B. Reed, A.A. Abgun. Doklady Akademiya Nauk SSSR, 128, 1153 (1959)
3. G.E. Bacon . Acta Cryst. 14, 823 (1961)
4. G. Shirane, W.J. Takei . Proc. of the Intern. Conf. on Magnetism and Cryst. Kyoto 1961.
J. Phys. Soc. Japan, 17, Suppl. B III, 35 (1962)
5. T.A. Kaplan . Phys. Rev. 116, 888 (1959)
6. A.W. Overhauser, A. ARROT. Phys. Rev. Lett. 4, 336 (1960)
7. A.W. Overhauser . Phys. Rev. 128, 1437 (1962)
8. A.W. Overhauser . J. Appl. Phys. 34, 1019 (1963)
9. M.K. Wilkinson, E.O. Wollan, W.C. Koehler, J.W. Cable . Phys. Rev. 127, 2080 (1962)
10. J.E. Goldman . Rev. Mod. Phys. 25, 113 (1953)
11. H. Bjerrum-Müller, K. Blinowski, A.R. Mackintosh, T. Brun . Solid State Comm. 2, 109 (1964)
12. H. Bjerrum-Müller, K. Blinowski, A.R. Mackintosh, P. Nielsen . Proc. Intern. Conference on Magnetism, Nottingham, 1964.
13. R.A. Montalvo, J.A. Marcus . Phys. Rev. Lett. 8, 151 (1964).

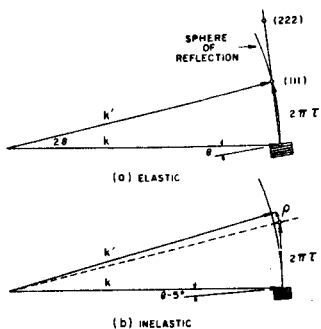


Рис. I.I.

Геометрия эксперимента в обратном пространстве:

- а) кристалл, установленный под брегговским углом;
- б) кристалл повернут от брегговского направления на 5° .

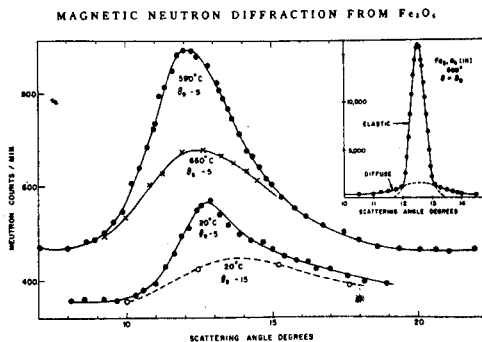


Рис. I.2.

Результаты измерений интенсивности рассеянных нейтронов в магнетите для разных положений образца и для разных температур.

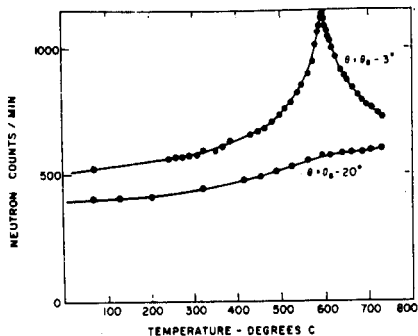


Рис. I.3. Температурная зависимость интенсивности рассеянных нейтронов вблизи брегговского направления для плоскостей (III).

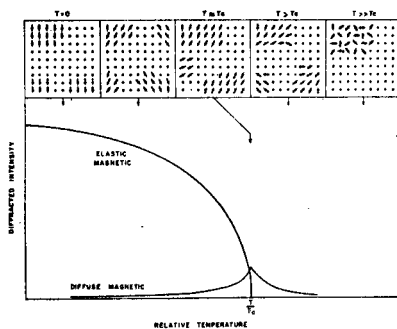


Рис. I.4. Схема упорядочения спинов в двухмерной решетке в зависимости от возрастания температуры.

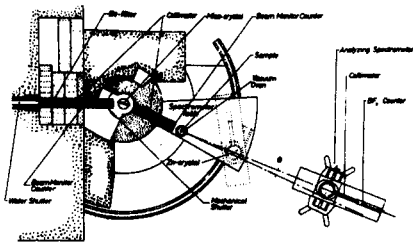


Рис. I.5.

Экспериментальная установка. Пунктирная линия означает положение анализирующего спектрометра при измерениях энергетического спектра рассеянных нейтронов.

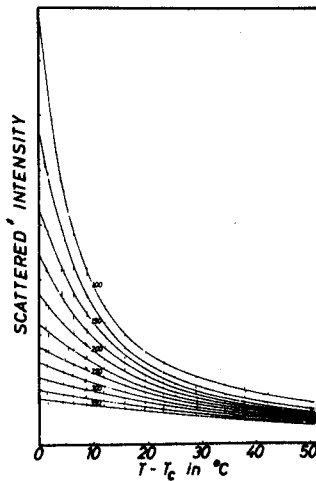


Рис. I.6.

Зависимость измеряемой интенсивности рассеянных нейтронов выше T_c . Числа на кривых означают угол рассеяния в градусах для которого выполнялись измерения.

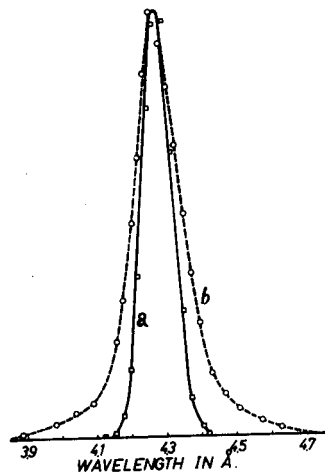


Рис. I.7. Сравнение спектра нейтронов падающих на образец (а) и рассеянных (б).
Угол рассеяния 2.5° , $\Delta T = 2^\circ\text{C}$.

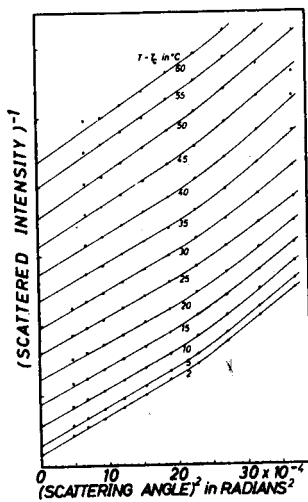


Рис. I.8. График обратной интенсивности, измеренной как функция от квадрата угла рассеяния.

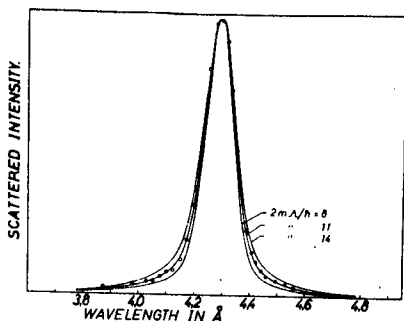


Рис. I.9. Сравнение измеренного спектра рассеянных нейтронов со спектрами, вычисленными для разных значений параметра λ .

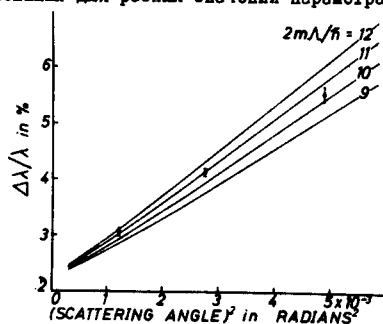


Рис. I.10. Зависимость полуширины $\Delta\lambda/\lambda$ от квадрата угла рассеяния. Сравнение опытных результатов с вычисленными.

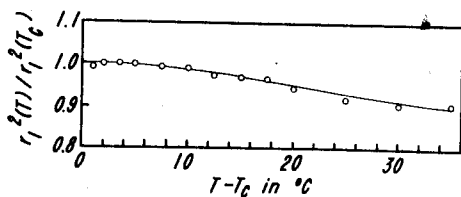


Рис. I.11. Температурная зависимость $r_1^2(T)/r_1^2(T_c)$ наблюдаемая на опыте.

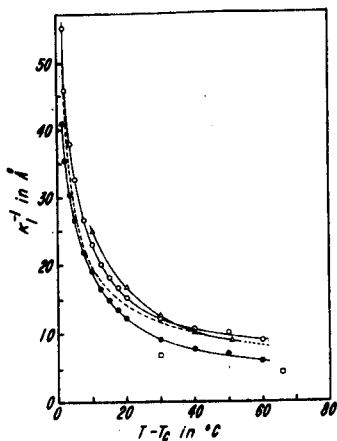


Рис. I.12

График длины корреляции ξ_1^{-1} как функция температуры. Кружками отмечены результаты представленной работы, полученные для статического приближения; черные точки обозначают величины длины корреляции, учитывающие неупругость рассеяния. Треугольники и квадраты показывают результаты JACROT и др. (16), а также GERSHA и др. (8) соответственно.

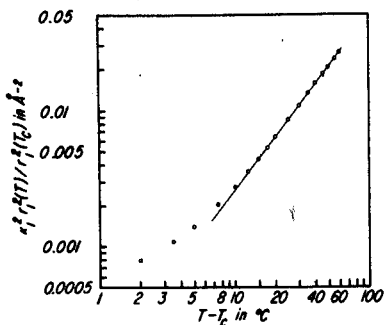


Рис. I.13

График двойной логарифмической зависимости $(\xi_1, \gamma_1)^2$ от $(T - T_c)$. Наклон прямой равняется 1.30

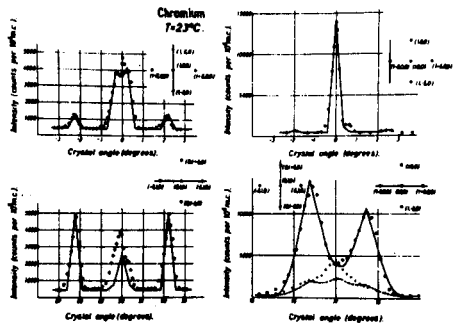


Рис. П.1

Магнитные брегговские отражения, измеренные вблизи точек обратной решетки (100) и (010). Обозначения, находящиеся при каждом рисунке с правой стороны сверху, иллюстрируют направление проводимых измерений. Непрерывные линии вычислены из наилучшей подгонки.

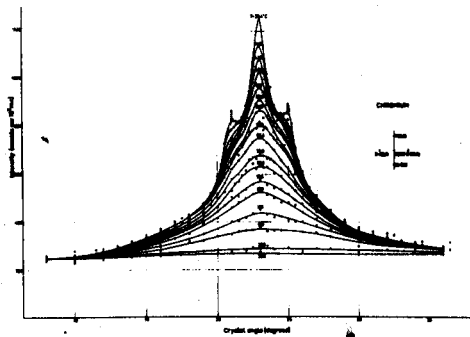


Рис. П.2

Критическое рассеяние, измеренное вдоль направления /010/ через точку (100). При каждой кривой указана соответственная ей температура.

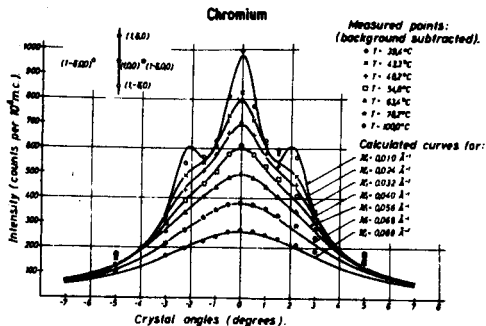


Рис. П.3 Результаты измерений критического рассеяния, аналогичные представленным на рис.П.2., обозначены точками. Кривые, проведенные по точкам, вычислены для указанных рядом значений λ .

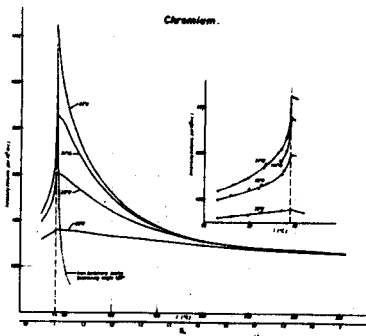


Рис. П.4 Температурная зависимость интенсивности рассеянных нейтронов выше критической точки для хрома и железа.

EXPERIMENTAL INVESTIGATION OF MAGNON SPECTRA

A. Wania

Institute of Nuclear Physics, Cracow, Poland

At present there two methods of investigation of single magnon groups are known:

a/ the neutron method

b/ the photon method

a/ The neutron method makes use of the magnetic inelastic scattering of neutrons.

The neutrons used here have the same order of energy as or less than the energy values encountered in the magnon energy bands. In such a case the one-magnon scattering leads to visible and measurable changes in the momentum and energy spectra of scattered neutrons. These changes contain information about the dispersion relations and lifetimes of the magnons involved in the scattering process. In principle they can give complete information about the magnon excitations. This review will contain a somewhat arbitrary presentation of the experimental technique and results obtained so far by this method.

b/ The photon method makes use of the phenomenon of resonance absorption of microwave quanta (photons) which takes place when the photon energy equals the energy of a particular magnon excitation allowed by the boundary conditions. This effect is known as FMR and can be observed in thin magnetic films (1). As yet this method is in general inferior (difficulties with interpretation) to the neutron one and we will not discuss it. In case of AFMR we do not have to use thin films but we obtain the energy gap E_g i.e. $E_m(q=0)$ only.

Experimental techniques of the neutron method

All experimental techniques are based on the use of the energy and momentum conservation laws applied to the one-magnon scattering of neutrons:

$$\frac{\hbar^2}{2m} (k^2 - k_0^2) = \varepsilon E_m(\vec{q}) \quad \vec{k} = \vec{k}_0 + \vec{c}_{hki} + \varepsilon \vec{q} \quad (1)$$

where $\varepsilon = -1$ or $+1$ for creation and destruction respectively. The double differential cross-section $\frac{d^2\sigma}{dR dE}$ formulas are rather involved (2) and contain a certain intensity law which is governed by magnetic atomic form factors and magnetic structure factors. However, these factors decide only the visibility of magnon scattering and not the localisation of magnon peaks. The same is true of the polarisation intensity factor which must be included in $\frac{d^2\sigma}{dR dE}$ when a polarised neutron beam is used. As far as the magnon scattering is concerned the information concerning the spin system dynamics

is extracted mainly from the localisation and shape of the inelastic peaks, absolute cross-sections are not measured. The intensity factors, including the polarisation one, are used, in case of necessity, when the identification of the observed magnon peaks against the background peaks (phonon or elastic) is doubtful. For this reason we will focus our attention on the consideration of the implications of equation (1).

The geometrical representation of equations (1) are surfaces defined in momentum or q -vector (reciprocal) space. These surfaces, called scattering surfaces, form the geometrical locus of the end points of the scattered neutrons wave vectors k when the impinging beam of neutrons is specified by a single wave vector k_0 (see fig.1). Thus usually at least one surface corresponds to every branch of magnon spectrum. In an ideal experiment one would like to measure the complete geometry of the scattering surfaces in various attainable experimental conditions. The most one could do is to cover all the points in the Brillouin zone. Then one would have the magnon energy magnon wave vector dependence in every place and every direction in reciprocal space of the investigated magnetic crystal. In practice this would demand the measuring, with proper accuracy, the momenta of scattered neutrons by many different experimental conditions i.e. different k_0 and crystal orientations. Such a task has not as yet been undertaken, instead one measures (using the spectrometric technique) the positions of a certain limited number of points belonging to particular scattering surface and lying on a particular crystallographic axis hkl , or measures (using the diffraction technique) the angular extension of the scattering surfaces.

Spectrometric technique

The development of neutron spectrometry produced a number of instruments which can analyse the momentum spectrum of scattered neutrons (3). These instruments belong to two classes:

a/ time of flight spectrometers

b/ crystal spectrometers

Time of flight spectrometers use a number of principles for the production of pulsed monoenergetic beams but, because of the identical detection systems, they should be classified as low luminosity multichannel neutron momentum spectrometers. On the contrary, crystal spectrometers are high luminosity one channel neutron momentum spectrometers. Thus, for the investigation of narrow lines (peaks) pertinent to the coherent one-phonon or one-magnon scattering the crystal spectrometers should prove better adapted. Apart from this, the triple axis crystal spectrometer is a more flexible tool because there exist at least six modes of operation (see fig. 2 and 3). Owing to this

flexibility one can choose at will to follow virtually every track in the momentum energy space. In particular, constant momentum transfer and constant energy transfer modes of operation were used. The measuring procedure is exactly the same as when dealing with phonon scattering. Recently it was proved possible to study phonons and magnons with polycrystalline (powder) samples. In such a case, because of the conservation laws, sharp breaks in the scattered neutron spectrum are formed(4). The localisation of these breaks depends on the magnon dispersion relation.

Diffraction technique

The diffraction technique can be applied when the magnon scattering is confined to narrow cones about the vectors K_0 . One then measures $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ i.e. the angular distribution of the scattered neutron intensity (5). For this reason, this technique does not demand very high intensity neutron beams as do the more advanced triple axis spectrometers. It can have a very good resolution for low q values. A necessary condition for its application is the closeness of the scattering surface concentrated around a certain reciprocal lattice node. Then we can speak about the scattering cone and measure its angular extension $\sqrt{\quad}$ in various directions. How the scattering surfaces and scattering cones evolve can be seen in the general case, i.e. for any form of the dispersion law, by the aid of a simple graphical construction. For this we use a neutron lattice (N.L.) formed by the neutron constant energy transfer $E = E'$ lines and magnon lattice (M.L.) formed by magnon constant energy lines (see fig.1). Because of the singularities in the $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ situated at the edge of the scattering cone, the boundary of the cone is welldefined (see fig.4). In order to see quickly how the scattering surfaces evolve in various situations, it is convenient to consider the one-dimensional representation along the axis (k_0) of the scattering cone (see fig. 5) (6). As can be seen, the scattering cone will be formed for a variety of different magnon dispersion relations. The problem is how to extract the information contained in $\int(\frac{d\sigma}{d\Omega})$. The best one can do is to compare the results with calculations based on a certain theoretical model of dispersion relation. Formulas have been calculated for the case of the quadratic $E_m = Dq^2$ (7) and linear $E_m = hq$ (8) dispersion laws. Krasnioki (9) has obtained formulas for the more general case of "square root" dispersion relation $E_m = B \left[(1 + Aq^2)^{\frac{1}{2}} + 1 \right]$ where with -1 for $q \rightarrow 0$ one obtains quadratic law with $D = \frac{1}{2} BA$ and linear law when $\frac{B}{A} \ll 1$ $hc = B\sqrt{A}$. This square root law fits the actual acoustic branch in magnitude much better than the quadratic one does. The diffraction technique gives data for small q values and for acoustic magnon branches (bands) with not too high energy gaps E_g . There are two

varieties of this technique, one using a white beam and one using a monochromatic beam of neutrons. The latter is advantageous because it may reveal anisotropic effects in magnon spectra more easily. One may still single out the so-called small angle scattering technique - in fact the diffraction technique applied to scattering cones connected with $\mathcal{C} = (000)$. It has a special advantage for the investigation of magnons with quadratic dispersion law (10). Then, in the absence of internal (anisotropy) or external magnetic fields, the width Γ is independent of the neutron wave vector magnitude, and a wide band of neutron energies can be used (semiwhite beam). Apart from this, polycrystalline samples can be investigated, if one is not interested in anisotropies, which is impossible with other diffraction techniques.

Identification of magnon peaks

If one suspects that the peak observed is not of magnon origin one can check this in one of the following ways:

- a) applying a magnetic field
- b) using polarized neutrons
- c) observing the temperature variation of intensities

a) Field dependence was the first and still is the most frequently used criterion. It was used by Brookhouse (11) and Lowde (12) in their pioneering works on magnon scattering performed with magnetite and iron respectively. The intensity of scattering depends on the orientation of magnetic moments in the sample. In the case of elastic and magneto-vibrational scattering of unpolarized neutrons the orientation sensitive intensity factor is:

$$1 - (\vec{k} \cdot \vec{m})^2 \quad (2)$$

for the case of magnon scattering it is:

$$1 + (\vec{k} \cdot \vec{m})^2, \quad (3)$$

where \vec{k} and \vec{m} are scattering and magnetization unit vectors respectively.

b) The polarization sensitive intensity factor for ferromagnon or ferrimagnon scattering is (13):

$$F_p = 1 + (\vec{k} \cdot \vec{m})^2 + 2 \varepsilon p (\vec{k} \cdot \vec{\zeta}) (\vec{k} \cdot \vec{m}), \quad (4)$$

where $\vec{\zeta}$ unit vector of incident neutron polarization, p degree of incident neutron beam polarization.

For $p = 1$ and

$$F = 0 \text{ when magnons are created } (\varepsilon = -1),$$

$$F = 4 \text{ when magnons are annihilated } (\varepsilon = +1).$$

In the conditions when $\vec{k} \parallel \vec{m}$ only the intensity component due to magnon scattering depends on polarisation and the background of the other effects can be eliminated. If the polarisation of incident beam is P_0 , the polarisation of the magnon scattered beam is (14):

$$\vec{P} = \frac{-2E\vec{k}(\vec{k} \cdot \vec{m}) - [1 + (\vec{k} \cdot \vec{m})^2]\vec{P}_0}{1 + (\vec{k} \cdot \vec{m})^2 + 2E(\vec{P}_0 \cdot \vec{k})(\vec{k} \cdot \vec{m})} \quad (5)$$

The polarisation of scattered neutrons when the incident beam is polarised was investigated by Drabkin et al. (15), who measured the polarisation changes in the case of an iron sample. They used the diffraction technique and small angle scattering around $\zeta = (000)$. The neutrons incident on the single crystal of iron were polarised by a reflection from a magnetised mirror and the polarisation of scattered neutrons analyzed by a second mirror. The mirror technique is particularly well fitted to small angle scattering experiments because the beam obtained is very narrow but not monochromatic. The sample was placed in a magnetic field $H = 26$ kG which produced the energy gap $E_g = 2\mu_B H = 0.25$ meV in the magnon spectrum. Then the scattering cones for magnon absorption and destruction have different widths, this being observed in the polarisation dependence of the intensity at the edge of the cones. The magnon scattering of polarised neutrons has been investigated by Ferguson and Saens (16) and by Samuelson and Riste (17) on magnetite. They used the diffraction technique with a monochromatic beam polarised by reflection from $\text{Co}_{0.92}\text{Fe}_{0.08}$ crystal and obtained full agreement with the formula (5). These experiments did not give new information about the magnon spectra but corroborated the correctness of theoretical formulas and demonstrate the potentialities of the polarised neutron technique.

c) Magnons as phonons are Bose type quasiparticles and their population factors increase with temperature, resulting in the increase of the magnon peak intensities. On the contrary, structure factors of magnetic elastic and magnetovibrational scattering decrease with temperature proportionally roughly to the intrinsic magnetisations.

It sometimes happens that the equilibrium orientation of the ionic spins changes with temperature (for instance such is the nature of Morin transition in hematite). Then the temperature change influences the magnon scattering intensity through the orientation factor $(\vec{k} \cdot \vec{m})$. Such transitions can be particularly helpful in the investigation of antiferromagnets which are not sensitive to external magnetic field and polarisation of the incident beam.

Experiments and results

In order to investigate magnons with reasonable accuracy one has to have, as a rule, large and good quality single crystals of magnetic substances because the typical

values of the total cross-section for magnon scattering is of the order of a few millibarns per magnetic ion. Most of the experiments done so far dealt with the low energy magnons and in the region of small q values i.e. with the initial parts of the dispersion relations for the acoustic magnon band. The experimenters obtained the dispersion constants D or c . Only in two cases (Fe_3O_4 and MnF_2) were the magnon dispersion relations measured up to the boundary of the Brillouin zone and the practically complete magnon spectrum was measured only in MnF_2 . At the same time, the problem of temperature changes in magnon spectra and magnon energy widths or lifetimes of magnon excitations, begins to be attacked experimentally. It is believed that the future detailed and accurate investigation of magnon dispersion relations and magnon energy widths will reveal "anomalies" caused by interaction with the other quasiparticles of solid state physics. Because the experiments are as yet neither systematic nor numerous they will be collected and presented according to the substances on which they have been performed.

Magnetite Fe_3O_4

In spite of the complexity of the magnetic unit cell it has been the subject of the largest number of neutron investigations, probably because large crystals of magnetite are easily found in nature. Mo Reynolds and Riste were the first to notice in it, in 1954, the inelastic magnetic scattering. Later, Brookhouse tried in 1957 to find the character of the magnon dispersion law for small q values, and used a magnetic field for identification of magnon peaks (19,20). He used the spectrometric technique with a crystal neutron spectrometer but obtained very poor resolution. In spite of the fact that his sample crystal was $65 \times 32 \times 3$ mm large it was difficult to say which type of dispersion relation was better fitted to the experimental points. This was established in favour of the quadratic one by the work of Riste, Blinowski and Janik (21) in 1959 who used the diffraction technique with a white neutron beam and covered a wide temperature range from R.T. up to the critical point. They found good qualitative agreement with the predictions of Elliot and Lowde (7). These results were then checked by Jaerot (23) and Riste (24) in Saclay where they measured the temperature changes in the acoustic magnon branch using the spectrometric technique with a time of flight cold neutron spectrometer. They perceived there for the first time the neutron magnon scattering surface. But the best resolution for the high energy magnons was obtained by Brookhouse and Watanabe (25) who used the spectrometric technique both on a triple axis spectrometer (for higher energies) and a rotating crystal time of flight spectrometer (for smaller energies). For the first time, the whole

acoustic branch and parts of two optic branches were observed and theoretical curves fitted by Glasser and Milford (26) (see fig. 6). They measured also the shift of the magnon peaks caused by temperature increase, it was qualitatively the same as that found by Riste (27). However, they did not notice the broadening of magnon peaks probably partly because of the resolution and partly because they did not reach close enough to the critical point of magnetite ($T_0 = 855^\circ\text{K}$). The problem frequently discussed is the temperature dependence (28,29) of magnon energies for the given q values. This can be inferred from diffraction technique measurements of Riste et al. (21,27) and of Dimitrijević et al. (30). The former showed that there is a certain temperature marked T_1 above which the magnon energies start to decrease violently. This temperature appeared to be strongly energy dependent. This seemed to be in agreement with the theoretical calculations of Nakamura and Bloch (28) taking into account the magnon - magnon interaction. However, the measurements of Dimitrijević et al. found a weaker energy dependence of the temperature behaviour of magnon energies. The discrepancy between these two results probably lies in resolution. This was five times better in the case of the second investigation. The temperature dependence has no sharp bending points and it is rather difficult to define any temperature like T_1 . But indeed the lower energy magnons are more temperature resistant than the higher energy ones (see fig.7).

It may be interesting to notice that for room temperature data obtained with diffraction technique Krasnicki (9) was able to get fully satisfactory agreement with the calculated acoustic branch obtained by Glasser and Milford (26) from the data given by Brockhouse and Watanabe (25). Thus the correctness of the diffraction technique has been checked for the first time by direct comparison with the data from the spectrometric technique. These diffraction technique measurements revealed unaccountable asymmetry in magnon scattering cones which as yet can be explained only by the assumption that for small q values the dispersion relation has some anomaly or becomes strongly anisotropic. This is similar to the effect found by Frikke and Riste (31) in cubic cobalt. These works dealt also with the broadening of magnon peaks. The lifetimes of magnons deduced from the broadening are of comparable magnitude for all investigated energies, being lower for higher energies and decreasing violently when approaching T_0 .

In general the results confirm the validity of the spin wave theory based on the simple Heisenberg Hamiltonian with $J_{AB} = -2.4$ meV and $J_{BB} = -0.1 \times J_{AB}$ and its extension to higher temperatures, taking into account the magnon - magnon interactions.

MnF₂

Is an antiferromagnet with rutile structure having a simple spin order ($T_0 = 68^\circ\text{K}$)

and two magnetic ions per unit cell. By now it represents the most completely investigated and best understood antiferromagnet. Okazaki et al. at Harwell (32) have measured with the spectrometric technique the magnon dispersion relation in two directions $[100]$ and $[001]$ up to the zone boundary. They found a considerable value of energy gap caused by the anisotropy field $H_a = 8.8$ kG, $E_g = 1.08$ meV ($H_e = 556$ kG), and $J_2 = -1.76^\circ\text{K}$ (0.153 meV), $J_1 = 0.3^\circ\text{K}$ (0.028 meV) in agreement with AFMR data. They observed the dispersion relation for $T = 0.06xT_0$, $0.74xT_0$ and $0.92xT_0$. Low (33) has calculated theoretically the temperature dependence of magnon energies in MnF_2 $E(q,T)$ taking into account the dynamical interaction of magnons by retaining the fourth power terms in magnon operators. This gave an amazing agreement up to the $T = 0.9xT_0$ (see fig.8) but it may be due to the fortuitous coincidence of higher order terms.

Hematite $\alpha - \text{Fe}_2\text{O}_3$

It is an antiferromagnet exhibiting a very weak ferromagnetic component and having four magnetic iron ions in rhombohedral unit cell. It has been investigated by the diffraction technique, first by Riste and Wanic (34) and then by Dimitrijević et al. at Vinca (35). They have observed only the low lying magnon branch and found: $E_g \leq 1.0$ MeV, $v_{[111]} = 25.5 \pm 1.0$ km/sec and that $v_{[110]} > v_{[111]}$. The good fit of the calculated dispersion relation was obtained for the exchange integrals $J_1 = J_2 = -2.1$ MeV. Alikhanov (this conference) has investigated hematite with spectrometric technique and found two low lying branches apparently different velocities. This discrepancy can be resolved by further measurements on the same sample. Riste's measurements showed a similar temperature behaviour as in the case of magnetite.

Pyrrhotite Fe_7S_8

Pyrrhotite is a ferrimagnet having a very complicated structure composed of a mixture of Fe^{++} , Fe^{+++} ions and a certain number of vacancies. The measurements were done at Vinca by Krasnioki, Wanic et al. (36,37) who used mainly the diffraction technique with a monochromatic beam. Two magnon branches were observed but only the initial part of the acoustic branch could be investigated with relatively good resolution, from room temperature up to about 400°C ($T_0 = 320^\circ\text{C}$). Strong anisotropy of the acoustic branch was discovered. The theoretical dispersion relation could be fitted to the measured one assuming that two exchange integrals $J_1 = J_2 = -1.1$ meV are different from zero. The temperature behaviour of magnon peaks showed that in pyrrhotite the higher energy magnons seem to be more temperature resistant than the lower energy ones, conversely to the situation found in magnetite. The magnon lifetimes begin to decrease sharply at approximately the same temperature $T = 0.8xT_0$ at which their energies start

to fall violently. It is difficult to take into account the resolution of the method. A way of doing so was presented in (9). The information about the magnon lifetimes in the case of diffraction technique may be obtained from the slopes of magnon peaks if one knows the slopes corresponding to the unbroadened magnons. The analysis made by Krasnioki suggests that at R.T. the lifetimes of magnons are already relatively short, because the slope widths ($\Delta\Gamma$) are larger than those resulting from instrumental resolution. They can be shortened by the disorder in the magnetic lattice. Such an effect was found in disordered 64Fe36Ni alloy (38) (see fig.9). Besides this, the comparison of measured $\Delta\Gamma(\theta)$ dependence with the estimated resolution curve i.e. $\Delta\Gamma(\theta)$ for not broadened magnons shows that magnons of certain energy ($E_m = 13.5$ meV) have reduced broadening, but the effect should be confirmed by more accurate measurements (see fig. 10).

MnO

This cubic antiferromagnet was investigated at Harwell (39) at 4.2 °K ($T_0 = 120^\circ\text{K}$). Single crystal sample and the twin rotor time of flight spectrometric technique were used. Magnons at 42 points of reciprocal space lying in the plane 110 were localized. Two theoretically predicted magnon branches (for q up to $0.20q_{\text{max}}$) were found (see fig.11). The least square fitting procedure applied to this 42 points and one point for $-q = 0$ obtained from AFMR measurement gave: $J_1 = -0.33 \pm 0.04$ meV, $J_2 = -0.29 \pm 0.013$ meV, $K_1 = 1.18 \times 10^{22}$ meV $\times\text{cm}^{-3}$, $9K_2 - K_1 = 2.0 \times 10^{21}$ meV $\times\text{cm}^{-3}$, where J_1 is between the nearest neighbours and $\angle \text{MnO-Mn} = 90^\circ$, J_2 is between the next nearest neighbours where $\angle \text{MnO-Mn} = 180^\circ$, K_1 and K_2 are anisotropy constants.

Co_{0.92}Fe_{0.08} b.c.c. cobalt stabilized by iron

Sinclair and Brookhouse (40) measured the dispersion relation in the direction $[111]$ up to about 50 meV using the triple axis spectrometer. They fitted the theoretical curve based on the Heisenberg model Hamiltonian with nearest neighbours interaction only, which gave $JS = 14.7 \pm 1$ meV and $E_g = 1.3 \pm 0.5$ meV. Frikke and Riste (31) made measurements for the low q region using the diffraction technique and found an anomaly (irregularity) in the dispersion relation which showed itself as an asymmetry of the magnon scattering cone. The anomaly was located at $q_1/q_{\text{max}} = 0.067 \pm 0.03$ for the $[110]$ direction, 0.072 ± 0.03 for $[111]$ and 0.078 ± 0.03 for the $[100]$ direction. They found from the data above q_1 that $\alpha = 84 \pm 2$, $JS = 6.94 \pm 0.70$ meV and $E_g = 2.9 \pm 0.6$ meV. They ascribe the anomaly to the interaction between magnetic localized electrons and the conduction electrons i.e. they believe it is the Kohn effect. In the last investigation done in Brookhaven (22), where the polarized incident beam was used, the anomaly

appeared to be less pronounced, but because of the poor statistics nothing more could be established. There is a possibility that the anomaly, if it is real, may be caused by strong magnetoelastic coupling i.e. by phonon - magnon interaction.

Nickel

Riste et al. (22) using the diffraction technique with the polarised neutron beam, measured, in the region $q/q_{\max} = 0.05 - 0.11$, $E_m = 3 - 13$ meV, the missetting dependence of Γ and fitted to it the one resulting from the quadratic dispersion relation. They found $\alpha = 162 \pm 25$ i.e. $D = 340 \pm 45$ meVÅ² which is in satisfactory agreement with the value $D = 400 \pm 20$ meVÅ² obtained by Hatherly et al. (38), taking into account the difference in the applied techniques.

Iron and its alloys

Iron was the first crystal investigated by Lowde (12) and since that time it has again been measured by Lowde and Umakantha (10) and lately by Hatherly et al. (38) whose investigations covered a number of compositions of the Fe-Ni alloy system. In the two last-mentioned works small angle scattering and the diffraction technique were used. The cut-off angle of the scattered intensity cone was measured because if we have $E_m = Dq^2$ and $E_{\text{neutron}} = dk^2$ then $\frac{K^2}{q^2} = \frac{d}{D}$ irrespectively of neutron energy. In order to subtract the background, a magnetic field was applied and the difference of intensities obtained between the situations when the sample was magnetized correspondingly parallel and perpendicular to the scattering plane. The measurements were performed on polycrystalline samples with the white neutron beam from the DIDO reactor. The D values at 0°K were found by extrapolation since the measurements were made in several temperatures between 100 and 400°K. The theory of magnon renormalization holds that the temperature dependence of D has the form: $D = \text{const}x/1 - C_T^T/2^{3/2}$ (). This dependence has been confirmed by data obtained on Fe₃O₄, Ni and Fe (see fig. 12). An interesting result of the work is the observation of the changes in D versus the composition from 100% Fe to 100% Ni. There is a transition between the b.c.c. structure of Fe to the f.c.c. structure of Ni. As iron is added to nickel the D value is lowered, which proves that the exchange integral J of Fe - Fe bonds in the f.c.c. structure is negative.

Conclusions

There is important progress in the investigations of magnon dispersion relations or magnon dispersion constants. However, systematic measurements of magnon energy width or anomalies in the dispersion relations or energy widths has not been as yet undertaken. These investigations are hindered by the technical difficulties. The availability of large single crystals of specific substances and (or) intense neutron beams are necessary.

Literature

- 1) F.E.Tannenwald, J.Phys.Soc.Japan, 17B1, 592 (1962).
- 2) D.A.Нэмов, УФН, 80, 41 (1963).
- 3) B.W.Brookhouse, Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids II, p.113, IAEA, Vienna 1961.
- 4) S.J.Cooking, Z.Guner, Inel.Scatt. of Neutrons in Solids and Liquids I, p.237, Vienna 1963.
- 5) T.Riste, K.Blinowski, J.Janik, A.Wanic, Pile Neutron Research in Physics. p.415, Vienna 1962.
- 6) A.Wanic, Nukleonika, 11, 839 (1964).
- 7) R.J.Elliott, R.D.Lowde, Proc.Roy.Soc., 230, 46 (1955).
- 8) T.Riste et al., Internal Report, No.3, (1963).
- 9) S.Krasnioki, Thesis (unpublished).
- 10) R.D.Lowde, M.Umakantha, Phys.Rev. Letters, 4, 452 (1960).
- 11) B.W.Brookhouse, Phys.Rev., 107, 1273 (1958).
- 12) R.D.Lowde, Proc.Roy.Soc., A235, 305 (1956).
- 13) A.W.Saens, Phys.Rev., 122, 1940 (1962).
- 14) O.Steinsvoll, Kjeller Report, No. 65 (1963)
- 15) Г.М.Драбкин, Е.И.Забидаров, Я.А.Касман, А.И.Осороков, В.А.Трунов, ЖЭТФ, 47, 2316 (1964).
- 16) G.A.Ferguson, A.W.Saens, J.Phys.Chem.Solids, 22, 117 (1962).
- 17) E.J.Samuelsen, T.Riste, O.Steinsvoll, Physics Letters, 6, 47 (1963).
- 18) A.W.Mc Reynolds, T.Riste, Phys.Rev., 92, 1161 (1954).
- 19) B.W.Brookhouse, Phys.Rev., 106, 859 (1957).
- 20) R.D.Lowde, J.Appl. Phys., 26, PII, 884 (1965).
- 21) T.Riste, K.Blinowski, J.Janik, J.Phys.Chem.Solids, 2, 153 (1959).
- 22) T.Riste, G.Shirane, A.H.Alperin, S.J.Pickart, J.Appl.Phys. 26 Part II, 1076 (65)
- 23) B.Jacrot, D.Cribier, J.Phys.Radium, 23, 494 (1962).
- 24) T.Riste, J.Phys.Soc.Japan, 17, SBIII, 60 (1962).
- 25) B.W.Brookhouse, H.Watanabe, Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids II p. 297, Vienna 1963.
- 26) M.L.Glasser, F.J.Milford, Phys.Rev.130, 1783 (1963).
- 27) T.Riste, J.Phys.Chem.Solids, 17, 308 (1961).
- 28) T.Nakamura, M.Bloch, Phys.Rev., 132, 2528 (1963).

- 29) R.E.Mills, R.T.Kenan, F.J.Milford, Phys.Letters, 12, 173 (1964).
- 30) Z.Dimitrijević, S.Krasnioki, H.Rsany, J.Todorovic, A.Wanic, to be published.
- 31) E.Frikke, T.Riste, Proceedings of the International Conference on Magnetism, p.299, London 1964.
- 32) A.Okasaki, K.C.Turberfield, R.W.H.Steveman, Physics Letters 8, 9 (1964).
- 33) G.G.Low, in Proceedings of the Symposium on Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids, 1964 (IAEA, Vienna 1965).
- 34) T.Riste, A.Wanic, J.Phys.Chem.Solids, 17, 318 (1961).
- 35) Z.Dimitrijević, H.Rsany, J.Todorovic, A.Wanic, in Inelastic Scattering of Neutrons, p.443, IAEA, Vienna 1965.
- 36) A.Wanic, J. de Physique, 22, 627 (1964).
- 37) S.Krasnicki, Z.Dimitrijević, R.Maglio, V.Markević, J.Todorovic, A.Wanic, J. de Physique 28, 634 (1964).
- 38) M.Hatherly, K.Hirakawa, R.D.Lowde, J.F.Mallett, AERE Report PR-SSP/3 (1962).
- 39) M.F.Collins, Proceedings of the International Conference on Magnetism, p.319, London 1964.
- 40) E.N.Sinclair, B.N.Brookhouse, Phys.Rev.120, 1638 (1960).

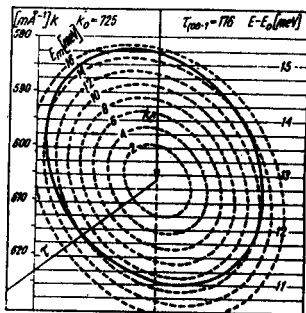


Fig. 1 Construction of the scattering surface for the case of pyrrhotite $\text{Fe}_7\text{S}_8(6)$.
 Section line within the plane (11.0) around $\zeta = (00.1)$ for $\Delta\theta = 41^\circ$,
 — neutron lattice lines, --- magnon lattice lines.

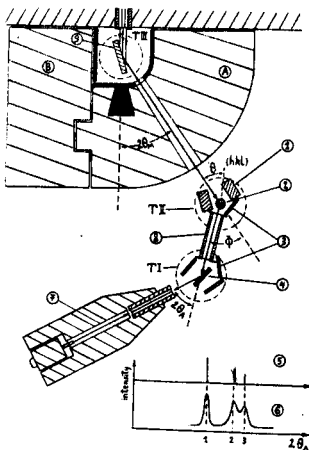


Fig. 2 Simplified draft of the triple axis spectrometer. The situation corresponds to the energy analysing technique (36).

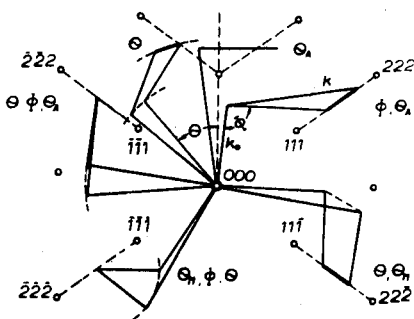


Fig. 3 Six modes of operation of the triple axis neutron spectrometer (3). For every diagram the changeable parameters are given.

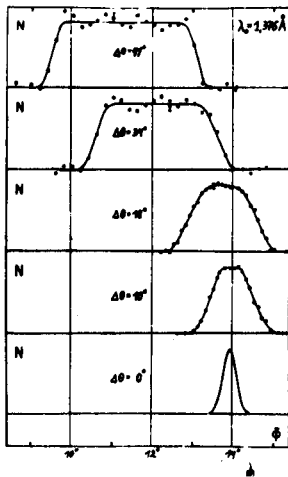


Fig. 4 Some exemplary peaks of magnon scattering in Fe_7S_8 and the elastic peak profile (for $\Delta\Theta = 0^\circ$) obtained with the diffraction technique, all being normalised to the same height (36).

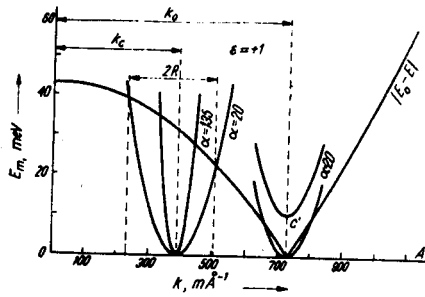


Fig. 5 One dimensional picture of scattering, the construction along the axis of the scattering cone (6).

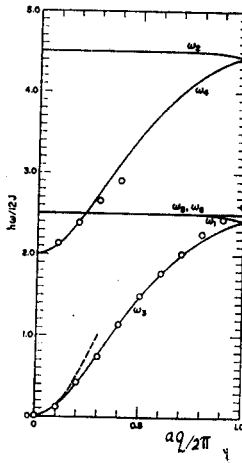


Fig. 6 Dispersion curves for ordered inverse spinel with $J_{AA} = J_{BB} = 0$, $J_{AB} = -24$ meV (26).

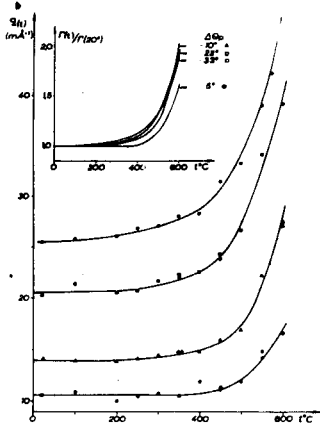


Fig. 7 The temperature behaviour of acoustic magnon energies in magnetite as seen by diffraction technique measurements (30).

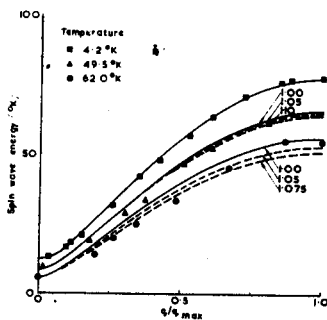


Fig. 8 Diagram showing the spin wave dispersion in MnF_2 for propagation along the c -axis. The experimental results of Okazaki et al. (32) are shown together with theoretical curves. The dashed curves show the effect of increasing the spin wave interaction term by the factors indicated.

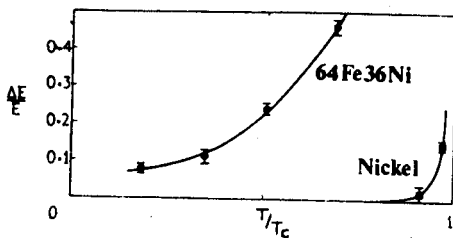


Fig. 9 The relative linewidths $\frac{\Delta E}{E}$ of small q magnons in a pure ferromagnetic metal and in a localized-moment alloy with severe spin disorder (20).

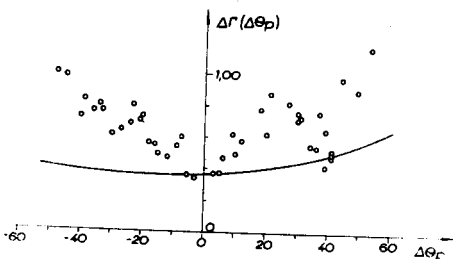


Fig. 10 The slope widths (proportional to the energy-widths) of the magnon diffraction peaks in Fe_7S_8 versus missetting angle, i.e. versus energy, of the magnons (9,37).

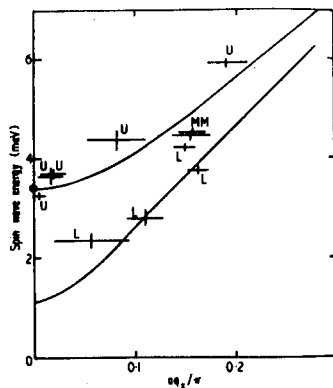


Fig. 11 Spin wave dispersion relations in a $[100]$ direction for MnO at 4.2°K . Experimental points marked U correspond to the upper branch, those marked L to the lower branch (39).

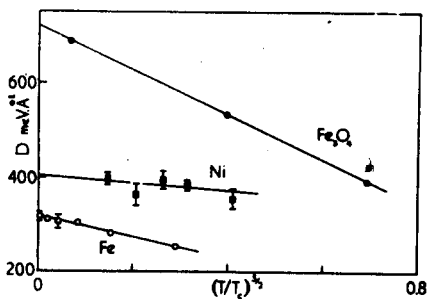


Fig. 12 The spin wave stiffness parameter D for three materials plotted against $T^{1/2}$ (20).

Рукопись поступила в издательский отдел
9 апреля 1988 г.