

## К ТЕОРИИ ДИНАМИЧЕСКОЙ МАГНИТНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ ОДНООСНЫХ СУПЕРПАРАМАГНИТНЫХ ЧАСТИЦ

© Э.К.Садыков, А.Г.Исавнин

Казанский государственный университет,  
420008 Казань, Россия  
(Поступила в Редакцию 29 ноября 1995 г.)

Вычислена динамическая магнитная восприимчивость малых частиц с магнитной анизотропией типа «легкая ось» в рамках модели непрерывного изменения ориентаций их магнитного момента, т.е. на основе уравнения Фоккера-Планка. Представлены результаты, позволяющие определить оптимальный диапазон параметров задачи, обеспечивающий максимальный отклик системы при реализации в ней стохастического резонанса. Оценивается коэффициент усиления переменного сверхтонкого поля в условиях внешней радиочастотной модуляции. Проводится сравнение с результатами модели дискретных ориентаций, использованной нами ранее.

1. Изучение свойств малых магнитных частиц представляет актуальную область исследований физики конденсированного состояния. Эти частицы, обладающие специфическими, зачастую уникальными особенностями, определяют характеристики таких материалов, как магнитные основы для записи и хранения информации, феррожидкости, кластерные структуры, пигменты красителей, некоторые катализаторы и т.д. Основные эффекты, характерные для системы малых (размером 10–1000 nm) частиц, являются следствием того, что магнитная энергия таких частиц, пропорциональная их объему, оказывается сравнимой с тепловой энергией. Это приводит к явлению суперпарамагнетизма [1]. Другой специфической чертой рассматриваемых объектов является относительно большое удельное количество атомов, расположенных вблизи поверхности частиц, что также может оказывать существенное влияние на их свойства.

Всем этим особенностям уделяется пристальное внимание исследователей. Так, в работах [2,3] теоретически рассмотрена частотная зависимость динамической магнитной восприимчивости для однодоменных частиц с магнитной анизотропией типа «легкая ось» для случаев продольного и перпендикулярного (относительно легкой оси) полей. Исследование свойств подобных частиц проводилось также на основе других экспериментальных методов (ЯМР [4], мессбауэровской спектроскопии [5] и др. [6]).

В [7–10] при рассмотрении систем малых магнитных частиц была использована концепция стохастического резонанса (СР) [11]. При

этом изучался отклик таких частиц на внешний (пробный) сигнал, когда система подвержена дополнительному возмущению внешнего модулирующего сигнала. В частности, в [7] вычислялась восприимчивость малых магнитных частиц, подверженных радиочастотной (РЧ) модуляции вдоль оси магнитной анизотропии относительно пробного РЧ-поля, направленного также вдоль легкой оси. Та же модулированная частица изучалась по отклику ядерных спинов в ней на пробное РЧ-поле, перпендикулярное легкой оси [8], вычислялись также мессбауэровские спектры таких систем [9,10]. Во всех этих случаях модулированная малая частица характеризуется откликом (выходным сигналом). Этот выходной сигнал определяется методом исследования и достигает максимума при определенном уровне шума (температуры), действующего на частицу, подтверждая тем самым концепцию СР. Следует отметить, что результаты [7], где предполагается наличие двух РЧ-полей, могут быть получены и на основе одного лишь пробного поля. В данном случае речь идет о температурном максимуме продольной восприимчивости одноосных магнитных частиц. Такая зависимость уже наблюдалась экспериментально [12]. Но использование двух полей (модулирующего и пробного) в остальных случаях является весьма существенным. В общем случае речь идет о полях, различающихся как по геометрии (или даже по природе), так и по диапазону используемых частот. По существу, в этих работах исследуется возможность изучения явления СР в мелкодисперсных магнетиках традиционными методами изучения магнетизма. В [13] предлагалось рассматривать СР также и для описания подбарьерного движения вектора намагниченности (эффекта макроскопического квантового туннелирования).

В указанных работах явление СР исследовалось в приближении дискретных ориентаций, которое предполагает, что вектор магнитного момента частицы имеет только два возможных состояния: вдоль направлений легкой оси. Это определяется условиями высокого потенциального барьера  $Kv \gg kT$  ( $K$  — константа магнитной анизотропии,  $v$  — объем частицы,  $T$  — температура) и малости амплитуды внешнего переменного поля  $\mu_0 MN \ll K$  ( $\mu_0$  — магнитная постоянная,  $M$  — намагниченность насыщения образца). Расчеты производились в рамках теории линейного отклика, что не позволяло установить зависимость эффекта от амплитуды поля. Существенным также было условие квазиadiaбатичности, т.е. частота внешнего поля должна была быть много меньше скорости локальной релаксации вектора магнитного момента к одному из минимумов двухъямного потенциала.

Существенной особенностью настоящей работы является то, что здесь мы используем модель непрерывной диффузии: зависящую от времени вероятность распределения вектора намагниченности частицы находим из соответствующего уравнения Фоккера–Планка (УФП). Необходимость использования такого метода вызвана результатами, полученными в [14], которые показывают, что квазиadiaбатическое приближение не всегда адекватно описывает подобные процессы. Кроме того, цель нашей работы состоит в том, чтобы провести на основе непрерывной модели более детальный анализ оптимальных значений внутренних и внешних параметров магнитной системы, обеспечиваю-

щих ее максимальный отклик на внешний сигнал. Помимо этого мы рассматриваем измерения сигнала СР как потенциальный метод исследования характеристик мелкодисперсных материалов, например распределения частиц в них по размеру. Такой анализ экспериментальных результатов должен быть основан на точных исходных теоретических соотношениях.

В данной работе мы исследуем явление СР как механизм усиления внешних сигналов в мелкодисперсных магнетиках. Впервые такая трактовка явления СР была предложена в [15] при описании эффекта усиления слабых сигналов в бистабильной, но не магнитной системе. Возможность усиления внешнего переменного поля в системе суперпарамагнитных частиц была рассмотрена нами [16,17] на основе модели дискретных ориентаций. В этих же работах была показана значимость такого подхода применительно к ядерно-физическим экспериментам.

2. Поведение вектора намагниченности  $M$  однодоменной частицы в отсутствие теплового возбуждения может быть описано на основе уравнения Гильберта [1]

$$\frac{dM}{dt} = \gamma M \times \left[ -\frac{\partial V}{\partial M} - \eta \frac{dM}{dt} \right], \quad (1)$$

где  $\gamma$  — магнетомеханическое отношение,  $\eta$  — коэффициент диссипации,  $\partial V/\partial M$  задает эффективное поле. Учет теплового воздействия приводит к преобразованию (1) в уравнение Ланжевена

$$\frac{dM}{dt} = \gamma M \times \left[ -\frac{\partial V}{\partial M} - \eta \frac{dM}{dt} + h(t) \right] \quad (2)$$

путем введения добавочного хаотического поля, которое для простоты можно характеризовать как «белый шум», т.е.

$$\langle h_i(t) \rangle = 0, \quad \langle h_i(t)h_j(t + \tau) \rangle = D\delta_{ij}\delta(\tau). \quad (3)$$

Когда частица имеет одноосную магнитную анизотропию и внешнее поле направлено вдоль легкой оси, свободная энергия Гиббса имеет вид

$$V(x, t) = -Kx^2 - Ax \sin(\Omega t + \varphi), \quad (4)$$

$x = \cos \theta$  ( $\theta$  — угол между направлениями вектора намагниченности и легкой оси),  $A = \mu_0 M H$ . Тогда УФП, соответствующее (2), принимает вид [1]

$$\frac{\partial P(x, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left\{ [1 - x^2] \left[ h' \frac{\partial V}{\partial x} P(x, t) + k' \frac{\partial P(x, t)}{\partial x} \right] \right\}, \quad (5)$$

где  $h' = \eta\gamma^2/(1 + \gamma^2\eta^2 M^2)$ ,  $k' = kTh'/v$ ,  $D = 2kT\eta/v$ . Его можно переписать в виде

$$\partial P(x, t)/\partial t = \left\{ \mathcal{L}_0(x) + \mathcal{L}_1(x) \sin(\Omega t + \varphi) \right\} P(x, t),$$

$$\mathcal{L}_0 = 2Q(3x^2 - 1) + 2x(Qx^2 - Q - k')\frac{\partial}{\partial x} - k'(x^2 - 1)\frac{\partial^2}{\partial x^2},$$

$$\mathcal{L}_1 = R(x^2 - 1)\frac{\partial}{\partial x} + 2Rx, \quad Q = h'K, \quad R = h'A. \quad (6)$$

Поскольку (6) имеет периодическую временную зависимость, его решение, согласно [18], может быть представлено в виде суперпозиции выражений типа Флоке

$$P^\lambda(x, t) = \exp(-\lambda t)p_\lambda(x, t), \quad p_\lambda(x, t) = p_\lambda(x, t + T), \quad T = 2\pi/\Omega. \quad (7)$$

Раскладывая  $p_\lambda(x, t)$  в ряд Фурье

$$p_\lambda(x, t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} p_n^\lambda(x) \exp[i n(\Omega t + \varphi)] \quad (8)$$

и подставляя (7) в (6), получим бесконечную систему зацепляющихся уравнений

$$\left[ \mathcal{L}_0 - (in\Omega - \lambda)\mathbf{1} \right] p_n^\lambda(x) - \frac{1}{2}i\mathcal{L}_1 \left[ p_{n+1}^\lambda(x) - p_{n-1}^\lambda(x) \right] = 0. \quad (9)$$

при получении которой было использовано свойство ортогональности тригонометрических функций. Разложим теперь коэффициенты  $p_n^\lambda(x)$  в ряд по ортонормированной системе полиномов Лежандра

$$p_n^\lambda(x) = \sum_{m=0}^{\infty} c_n^m \psi_m(x), \quad \psi_m(x) = \sqrt{m+1/2} P_m(x), \quad m = 0, 1, 2, 3, \dots \quad (10)$$

Далее, используя рекуррентные свойства полиномов Лежандра, из (9) получим

$$\sum_{m'=0}^{\infty} Q_{m, m'}^n c_n^{m'} + Q_{m, m'}^+ c_{n+1}^{m'} + Q_{m, m'}^- c_{n-1}^{m'} = 0, \quad (11)$$

где  $Q^n, Q^+, Q^-$  — комплексно-значные матрицы:

$$Q_{m, m'}^n(\lambda) = L_0^{m, m'} - in\Omega \delta_{m, m'} + \lambda \delta_{m, m'},$$

$$Q_{m, m'}^+ = -i\frac{1}{2}L_1^{m, m'} = -Q_{m, m'}^-, \quad (12)$$

$$L_i^{m, m'} = \int_{-1}^1 (\psi_m(x))^* \mathcal{L}_i \psi_{m'}(x) dx \quad (i = 0, 1) \quad (13)$$

(см. Приложение). Вводя столбцы  $c_n = (c_n^0, c_n^1, c_n^2, c_n^3, \dots)^T$ , получим тридиагональное векторное рекуррентное соотношение

$$\mathbf{Q}^n(\lambda)c_n + \mathbf{Q}^+ c_{n+1} + \mathbf{Q}^- c_{n-1} = 0, \quad (14)$$

которое разрешается численно (с использованием ЭВМ) методом цепных матричных дробей [19]. Метод нахождения собственных значений  $\lambda$  также подробно описан в [19].

Нас интересует асимптотическая плотность вероятности  $P(x, t)$  при  $t \rightarrow \infty$ , соответствующая  $\lambda = 0$ . Для того чтобы найти функцию  $p^{\lambda=0}(x, t)$ , необходимо определить все коэффициенты разложения  $\{c_n\}$  из (14) при  $\lambda = 0$ . Таким образом, решение УФП (6) может быть представлено в виде

$$P(x, t) = \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_n^m \exp(in\Omega t + \varphi) \psi_m(x), \quad (15)$$

со следующей нормировкой

$$N = \int_{-1}^1 P(x, t) dx = \sqrt{2} \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_n^0 \exp(in\Omega t + \varphi).$$

Вычисления показывают, что все  $c_n^0 = 0$ , кроме  $c_0^0$ , причем  $c_0^0$  является вещественным. Плотность вероятности (15) позволяет найти асимптотическое ( $t \rightarrow \infty$ , соответствующее установившемуся режиму), зависящее от времени статистическое среднее значение проекции вектора намагниченности на легкую ось

$$M\langle x(t) \rangle = \frac{M}{N} \int_{-1}^1 x P(x, t) dx = \sum_{n=0}^{\infty} (\text{Re} b_n) \cos[n(\Omega t + \varphi)] - (\text{Im} b_n) \sin[n(\Omega t + \varphi)], \quad b_n = 2c_n^1 / (\sqrt{3}c_0^0), \quad (16)$$

которое и является интересующей нас характеристикой динамики системы.

Усиление переменных сигналов в мелкодисперсной магнитной системе можно характеризовать вещественной частью динамической магнитной восприимчивости (если необходимо учитывать синфазность изменения магнитного момента по отношению к внешнему полю) или ее абсолютной величиной — отношением амплитуды первой гармоники из разложения (16) к амплитуде внешнего сигнала (т.е. переменного поля)

$$\frac{\Delta M^{(1)}}{H} = \frac{M \sqrt{(\text{Re} b_1)^2 + (\text{Im} b_1)^2}}{H} = \sqrt{[\text{Re} \chi(\Omega)]^2 + [\text{Im} \chi(\Omega)]^2} = |\chi(\Omega)|. \quad (17)$$

Коэффициент усиления  $K = 1 + \chi(\Omega)$  (отношение внутреннего магнитного поля, индуцируемого в среде под влиянием внешнего поля, к амплитуде этого поля) не намного отличается от единицы для реальных систем, подпадающих под нашу модель (так как независимость

частиц предполагает их достаточную малую концентрацию). Однако в случае ядерных методов исследований (ЯМР, мессбауэровская спектроскопия) коэффициент усиления внешнего переменного поля может превышать единицу на несколько порядков. В данном случае мы измеряем поле, индуцируемое на ядре переменной компонентой магнитного момента одного иона. Исходя из выражений для энергии сверхтонкого взаимодействия на частоте модуляции  $\Omega$  и для магнитного момента, приходящего на один ион

$$A_0 \langle S \rangle^{(1)} I = g_n \mu_n I \mu_0 H_N,$$

$$g_e \mu_B \langle S \rangle^{(1)} = \Delta M^{(1)} v_0 = H v_0 |\chi| \quad (18)$$

$A_0$  — константа сверхтонкого взаимодействия,  $v_0$  — объем одного магнитного иона,  $H_N$  — амплитуда поля, индуцируемого на ядре), коэффициент усиления может быть определен следующим образом:

$$K_{\text{amp}} = H_N / H = [A_0 v_0 / (\mu_0 g_e g_n \mu_B \mu_n)] |\chi|. \quad (19)$$

Как показывают численные оценки, для частицы железа  $\text{Fe}^{57}$  коэффициент при  $|\chi|$  в (19) имеет величину порядка единицы, тогда как  $|\chi|$  (рис. 1–5) принимает значения  $\sim 200$ –900.

3. Нами вычислены значения абсолютной величины динамической магнитной восприимчивости (и ее составляющих) (рис. 1) мелкодисперсной магнитной системы, что, в частности, позволяет определить коэффициент усиления сверхтонкого поля на ядрах отдельной частицы. Вычисления на основе решения УФП прежде всего подтверждают правильность выводов предшествующей работы [17] о возможном механизме усиления внешнего переменного поля малой амплитуды в системед суперпарамагнитных частиц. Полученные зависимости  $|\chi|$  от приведенной температуры  $S = kT / Kv$  представляют кривые типа СР.

Существенная часть данной работы заключается в изучении зависимости эффекта СР от параметров задачи. На рис. 2 показана серия кривых для различных частот модуляции при постоянстве остальных параметров. Штриховые линии отражают результаты модели дискретных ориентаций при тех же параметрах системы. Заметим еще раз, что дискретная модель справедлива лишь в области  $S \ll 1$ . Рис. 3

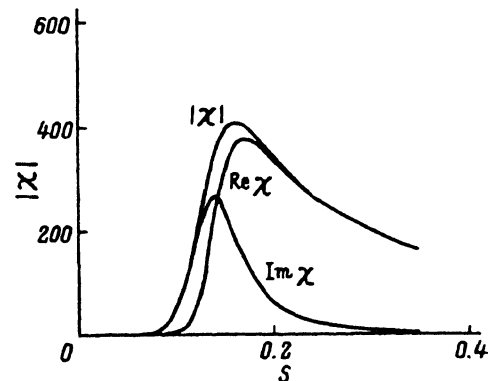


Рис. 1. Зависимость абсолютной величины ( $|\chi|$ ), вещественной  $\text{Re}\chi$  и мнимой  $\text{Im}\chi$  частей динамической магнитной восприимчивости от безразмерной температуры  $S = kT / Kv$  ( $K$  и  $v$  не изменяются).

$K = 4 \cdot 10^4 \text{ J/m}^3$ ,  $v = 10^{-24} \text{ m}^3$ ,  $M = 1.72 \times 10^6 \text{ A/m}$ ,  $\Omega = 10^6 \text{ Hz}$ ,  $H = 10^3 \text{ A/m}$ ,  $\alpha = 0.1$ .

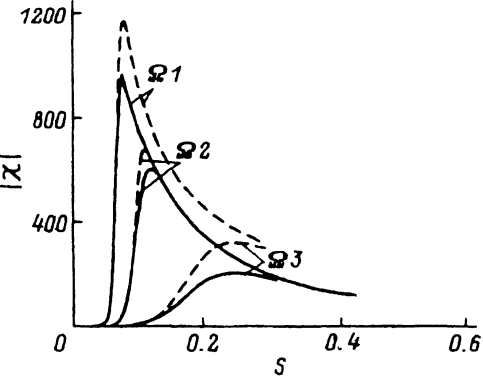


Рис. 2. Зависимость абсолютной величины  $|\chi|$  динамической магнитной восприимчивости от  $S$  при различных частотах внешнего поля.

$\Omega_1 = 10^3$  Hz,  $\Omega_2 = 10^5$  Hz,  $\Omega_3 = 10^7$  Hz.  $M = 1.72 \cdot 10^6$  A/m,  $H = 10^3$  A/m,  $\alpha = 0.1$

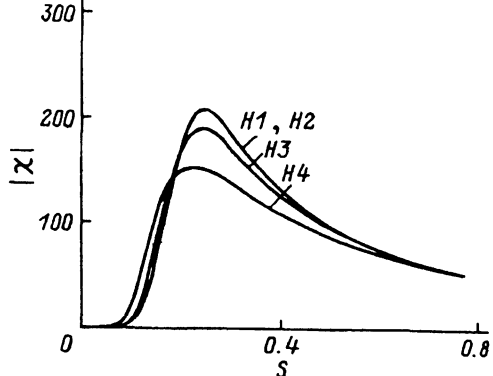


Рис. 3. То же что на рис. 2, при различных амплитудах внешнего поля.

$H_1 = 10^2$  A/m,  $H_2 = 10^3$  A/m,  $H_3 = 5 \times 10^3$  A/m,  $H_4 = 10^4$  A/m. Для  $H_1$  и  $H_2$  результаты уже совпадают, и дальнейшее уменьшение амплитуды внешнего поля не приводит к изменению вида кривых.  $M = 1.72 \cdot 10^6$  A/m,  $\Omega = 10^7$  Hz,  $\alpha = 0.1$ .

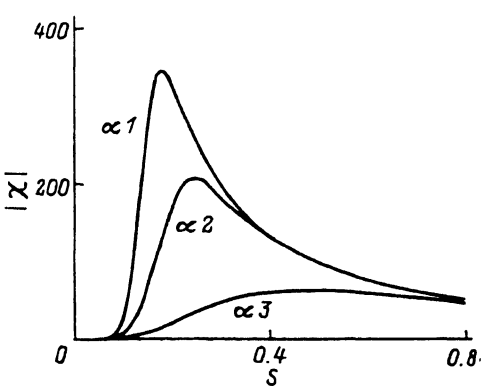


Рис. 4. То же, что на рис. 2, при различных коэффициентах затухания.

$\alpha_1 = 1$ ,  $\alpha_2 = 0.1$ ,  $\alpha_3 = 0.01$ .  $M = 1.72 \cdot 10^6$  A/m,  $\Omega = 10^7$  Hz,  $H = 10^3$  A/m.

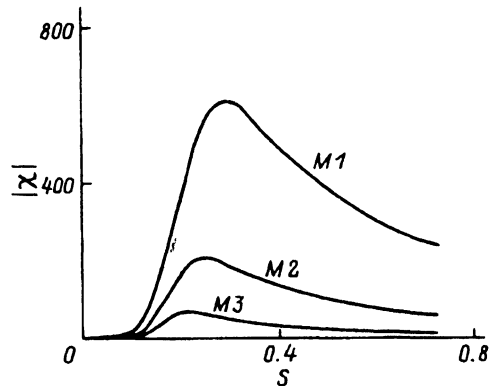


Рис. 5. То же, что на рис. 2, при различных величинах намагниченности насыщения образца.

$M_1 = 2M_2$ ,  $M_2 = 1.72 \cdot 10^6$  A/m,  $M_3 = 0.5M_2$ .  $\alpha = 0.1$ ,  $\Omega = 10^7$  Hz,  $H = 10^3$  A/m.

представляет результаты расчетов по амплитудной зависимости эффекта. Тем самым используемый метод позволяет выйти за рамки теории линейного отклика, используемого в [17]. На рис. 4 изображены кривые, рассчитанные для различных значений параметра диссипации  $\alpha = \eta\gamma M$ . Наконец, на рис. 5 показаны зависимости обсуждаемого эффекта от величины намагниченности насыщения. Даже в низкочастотном диапазоне, при низких температурах и слабом внешнем сигнале, где модель дискретных ориентаций является достаточно хорошим приближением, использование непрерывной модели как более точной может оказаться необходимым, если речь идет об интерпретации эксперимента.

Немонотонная, характерная для СР температурная (если положить  $K\nu$  фиксированным) зависимость магнитной восприимчивости и коэффициента усиления одноосной суперпарамагнитной частицы отражает тот факт, что в определенном температурном интервале происходит трансформация энергии беспорядочных тепловых флуктуаций вектора намагниченности в частично упорядоченное движение. Степень этого упорядочения и характеризуют полученные кривые. Однако следует заметить, что регулярное изменение намагниченности происходит все же на фоне тепловых флуктуаций, поэтому результирующая динамика намагниченности представляет собой комбинацию двух составляющих различной природы: осциллирующей и хаотичной. Эффект СР позволяет усилить первую и ослабить вторую. В заключение хотим отметить, что СР в модели непрерывного изменения проекции вектора намагниченности на легкую ось рассматривали и авторы [20], используя при этом асимптотические (высоко- и низкотемпературные) решения соответствующего кинетического уравнения для продольной составляющей намагниченности.

Работа выполнена при поддержке Международного научного фонда (грант NNT000) и Российского фонда фундаментальных исследований (грант №95-02-05762).

## Приложение

Матричные элементы операторов  $\mathcal{L}_0, \mathcal{L}_1$  есть

$$L_0^{m,m'} = \left\{ \frac{(6Q + 2Qm)(m+1)^2}{(2m+1)(2m+3)} - [2Q + k'm(m+1)] - \frac{2Qm^2}{\sqrt{(2m+1)(2m-1)}} + \frac{m^2(6Q + 2Qm)}{(2m-1)(2m+1)} \right\} \delta_{m,m'} + \left\{ \frac{[6Q + 2Q(m+2)](m+1)(m+2)}{\sqrt{(2m+5)(2m+1)(2m+3)(2m+3)}} - \frac{2Q(m+2)(m+1)}{\sqrt{(2m+1)(2m+3)}} \right\} \delta_{m,m'-2} + \frac{[6Q + 2Q(m-2)]m(m-1)}{\sqrt{(2m-3)(2m+1)(2m-1)(2m-1)}} \delta_{m,m'+2},$$

$$L_1^{m,m'} = \frac{R(m+1)m}{\sqrt{(2m'+1)(2m+1)}} \delta_{m,m'+1} - \frac{R(m+1)m}{\sqrt{(2m+3)(2m+1)}} \delta_{m,m'-1}.$$

## Список литературы

- [1] Brown W. Phys. Rev. **130**, 3, 1677 (1963).
- [2] Райхер Ю.А., Шлиомис М.И. ЖЭТФ **67**, 3(9), 1060 (1974).
- [3] Гехт Р.С., Игнатченко В.А., Шлиомис М.И. ЖЭТФ **70**, 4, 1300 (1976).
- [4] Gossard A., Portis A., Rubinstein M., Lindquist A. Phys. Rev. **A138**, 5A, 1415 (1965).
- [5] Белозерский Г.Н., Павлов Б.С. ФТТ **25**, 6, 1690 (1983).
- [6] Петраковский Г.А., Аплеснин С.С., Пискорский В.П. Изв. вузов Физика. **10**, 46 (1984).



- [7] Садыков Э.К. ФТТ **33**, 11, 3302 (1991).
- [8] Скворцов А.И., Садыков Э.К. ФТТ **34**, 11, 3602 (1992).
- [9] Садыков Э.К., Скворцов А.И. Письма в ЖЭТФ **52**, 2, 752 (1990).
- [10] Садыков Э.К., Скворцов А.И. ФТТ **33**, 9, 2725 (1991).
- [11] McNamara B., Wiesenfeld K. Phys. Rev. **A39**, 9, 4854 (1989).
- [12] Gittleman J.I., Abeles B., Bozovski S. Phys. Rev. **B9**, 9, 3891 (1974).
- [13] Григоренко А.Н., Конов В.И., Никитин П.И. Письма в ЖЭТФ **52**, 11, 1182 (1990).
- [14] Gang H., Qing G., Gong D., Weng X. Phys. Rev. **A44**, 10, 6414 (1991).
- [15] Jung P., Hanggi P. Phys. Rev. **A44**, 12, 8032 (1991).
- [16] Садыков Э.К., Скворцов А.И. Антонов Ю.А., Исавнин А.Г. Изв. РАН. Сер. физ. **58**, 4, 101 (1994).
- [17] Садыков Э.К., Исавнин А.Г. ФТТ **36**, 11, 3473 (1994).
- [18] Jung P. Z. Phys. **B76**, 521 (1989).
- [19] Risken H. The Fokker-Planck Equation Springer. Berlin (1984). 454 p.
- [20] Raikher Yu.L., Stepanov V.I. J. Phys.: Cond. Matter, **6**, 4137 (1994).