

Избирательное подавление старших гармоник намагниченности в суперпарамагнитной системе

© Ю.Л. Райхер, В.И. Степанов

Институт механики сплошных сред Уральского отделения Российской академии наук,
614013 Пермь, Россия

E-mail: raikher@icmm.ru

(Поступила в Редакцию 16 мая 2000 г.)

Изучено низкочастотное динамическое намагничивание суперпарамагнитной частицы. Показано, что в спектре системы возможно избирательное подавление старших гармоник при изменении как температуры (шумовой резонанс), так и интенсивности возбуждения (силовой резонанс).

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 98-02-16453) и INTAS (грант N 96-0663).

Исследования по стохастическому резонансу выявили целый ряд замечательных свойств нелинейных осцилляторов с шумом. В частности, был обнаружен так называемый шумовой (noise-induced) резонанс, присущий как двухъямным [1], так и одноямным [2] потенциалам. Эффект шумового резонанса (ШР) заключается в избирательном подавлении старших гармоник отклика на гармоническое возмущение при некоторых (немалых) значениях интенсивности шума. В настоящее время изучаются варианты использования ШР в схемах обработки сигналов для оптимизации стандартных цепей [3] и создания детекторов нового типа [4].

В теории стохастического резонанса и связанных с ним явлений стандартной модельной системой (см., например, обзор [5]) является передемпфированный нелинейный осциллятор, помещенный в тепловой резервуар. Простым и заведомо реальным физическим объектом, полностью отвечающим такому описанию, является однодоменная магнитная частица. Действительно, как показали недавние точные эксперименты [6,7], магнитное поведение изолированных наночастиц очень хорошо описывается броуновской магнитодинамикой (суперпарамагнетизм). Мы будем относить наши результаты к статистическому ансамблю таких частиц в пренебрежении их взаимодействием. Задача о стохастическом резонансе в суперпарамагнетике в приближении линейного отклика исследовалась в [8–12], некоторые свойства отклика суперпарамагнетика на конечно-амплитудное возбуждение рассматривались в [13–15], а магнитодинамика в сильном постоянном поле — в [16]. Однако никогда прежде вопрос о существовании даже простого ШР в таких системах не ставился.

В оригинальных работах [1,2] существование ШР было доказано с помощью метода малого параметра. Спектр отклика записывался в виде степенного ряда и при нахождении k -й гармоники отбрасывались все вклады порядка выше ξ^k , где ξ — отношение энергии внешнего возбуждения к тепловой. Таким образом, теория [1,2] справедлива только в области $\xi < 1$. В настоящей работе приведен краткий анализ отклика системы с ангармони-

ческим потенциалом, которая находится под действием постоянного (смещение) и переменного (возбуждение) полей, амплитуды которых достаточно велики. Выход за рамки теории возмущений помогает понять, что ШР есть лишь одно из проявлений общего нелинейного поведения термализованного осциллятора. В действительности ШР всегда присутствует в сочетании с другим эффектом, который для симметрии терминов мы назвали силовым резонансом (force-induced resonance). Силовой резонанс (СР) также выражается в избирательном подавлении старших гармоник, но здесь управляющим параметром служит интенсивность возбуждения.

Рассмотрим наночастицу ферромагнетика, размер которой настолько мал (~ 10 nm), что она является однодоменной. Тогда ее магнитное состояние полностью характеризуется ориентацией магнитного диполя с моментом $\mu = IV$, где I — намагниченность ферромагнетика, а V — объем частицы; вдали от точки Кюри величину μ можно считать постоянной. Если частица находится в твердой матрице, все движение диполя исчерпывается его вращением внутри частицы и может быть описано единичным вектором \mathbf{e} или парой сферических координат θ и ϕ ; полярную ось мы направили вдоль оси легкого намагничивания. При своем вращении вектор $\boldsymbol{\mu} = \mu\mathbf{e}$ испытывает действие объемной магнитной анизотропии (симметричный двухъямный потенциал), поля смещения H_0 и переменного поля $H_1(t) = H_1 \cos \omega t$ (векторы \mathbf{H}_0 и \mathbf{H}_1 считаем направленными вдоль оси анизотропии). Частота возбуждения ω предполагается малой по сравнению с ларморовой, т.е. $\omega \ll \gamma(H_0 + H_1)$, где γ — гиромагнитное отношение.

Магнитодинамика однодоменной частицы в тепловом резервуаре с температурой T описывается уравнением типа Фоккера–Планка [17,18], которому подчиняется ориентационная функция распределения $W(\mathbf{e}, t)$ магнитного момента

$$2\tau \dot{W} = \hat{\mathbf{J}}W\hat{\mathbf{J}}(U/T + \ln W), \quad (1)$$

где $\hat{\mathbf{J}}$ — оператор бесконечно малого поворота по углам вектра \mathbf{e} , а U — зависящая от ориентации часть внутрен-

ней энергии частицы. Характерное время вращательной диффузии вектора \mathbf{e} есть

$$\tau = \beta I / 2\lambda\gamma, \quad (2)$$

где $\beta = V/T$, λ — безразмерная константа затухания из уравнения Ландау–Лифшица. В рассматриваемой ситуации потенциал зависит только от полярного угла θ и имеет вид

$$U/T = -\sigma \cos^2 \theta - (\xi_0 + \xi_1 \cos \omega t) \cos \theta, \quad (3)$$

с безразмерными параметрами

$$\xi_0 = \beta I H_0, \quad \xi = \beta I H_1, \quad \sigma = \beta K, \quad (4)$$

где $K > 0$ — плотность энергии магнитной анизотропии.

При использовании кинетического описания (1) физический смысл имеют только величины, получаемые усреднением соответствующей "микроскопической" переменной с функцией распределения $W(\theta, t)$. Из них первоочередной интерес представляет намагниченность $M(t) = I\Phi(\cos \theta)$; здесь Φ — объемное содержание частиц в системе. Далее вместо $M(t)$ мы используем безразмерную функцию $m(t) = M(t)/I\Phi = \langle P_l(\cos \theta) \rangle$, где $P_l(\cos \theta)$ — полином Лежандра.

Переходя к представлению кинетического уравнения через моменты $\langle P_l(\cos \theta) \rangle$ и учитывая соотношения (3) и (4), получаем систему дифференциально-разностных уравнений [14,19]

$$\begin{aligned} 2\tau \frac{d}{dt} \langle P_l \rangle + l(l+1) \langle P_l \rangle - 2\sigma \left[\frac{(l-1)l(l+1)}{(2l-1)(2l+1)} \langle P_{l-2} \rangle \right. \\ \left. + \frac{l(l+1)}{(2l-1)(2l+3)} \langle P_l \rangle - \frac{l(l+1)(l+2)}{(2l+1)(2l+3)} \langle P_{l+2} \rangle \right] \\ - (\xi_0 + \xi \cos \omega t) \frac{l(l+1)}{2l+1} [\langle P_{l-1} \rangle - \langle P_{l+1} \rangle] = 0. \quad (5) \end{aligned}$$

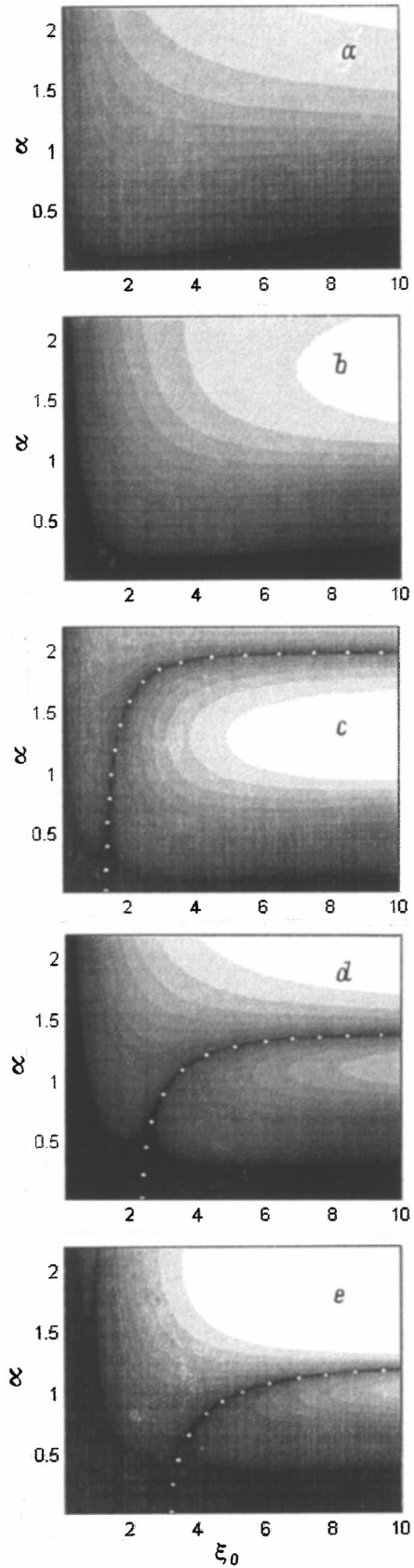
Используем ее для изучения генерации кратных гармоник намагниченности. Подстановка статистических моментов в виде частотных рядов Фурье

$$\langle P_l \rangle = \sum_{k \geq 0} b_{lk}(\omega) e^{ik\omega t} \quad (6)$$

преобразует (5) в бесконечномерное матричное уравнение, из которого методом матричной прогонки находится с нужной точностью набор амплитуд $b_{lk}(\omega)$. Его подмножество $\{b_{1k}(\omega)\}$, согласно (6), определяет спектр колебаний намагниченности, которую запишем в виде

$$m(t) = \sum_{k \geq 0} m_k(\alpha, \xi_0, \varepsilon, \omega\tau) \exp[i(k\omega - \varphi_k)], \quad (7)$$

здесь m_0 — постоянная составляющая, а m_k с $k \geq 1$ — амплитуды гармоник; по определению все эти величины вещественны и неотрицательны. Для удобства набор материальных параметров в (7) преобразован по сравнению с (4): величины $\alpha \equiv \xi/\xi_0$ и $\varepsilon = \sigma/\xi_0$ не зависят от температуры.



Амплитуды m_k гармоник намагниченности кратности 1 (a), 2 (b) 3 (c) 4 (d) 5 (e) как функции параметров $\alpha = H_1/H_0$ и $\xi_0 \propto 1/T$. Росту амплитуды отвечает высветление тона.

Приведем решение задачи (5) для магнитоизотропных частиц ($\varepsilon = 0$). Как и в [1,2], влияние шума сильнее всего проявляется в адиабатическом режиме, т.е. при $\omega\tau \rightarrow 0$. В этом пределе асимптотику решений полной неравновесной системы (5) можно получить, используя функцию распределения в квазибольцмановской форме $W(t) \propto \exp(-U/T)$, где энергия дается соотношением (3). На рисунке представлены в виде тоновых диаграмм найденные полным численным решением системы (5) и проверенные затем по асимптотическим формулам амплитуды m_{1-5} гармоник намагниченности; тон диаграммы тем светлее, чем выше значения m_k . В постоянном поле смещения ($H_0 = \text{const}$) координата α пропорциональна амплитуде возбуждающего поля, а координата ξ_0 имеет смысл обратной температуры. Области вокруг линий уровня $\alpha_k = \alpha_k(\xi_0)$, на которых соответствующие амплитуды (m_3, m_4, m_5) равны нулю, образуют на рисунке ($c-e$) темные "рукава". Поскольку контраст графиков недостаточен для того чтобы проследить ход этих линий вблизи оси абсцисс, они дополнительно показаны светлыми маркерами. При движении по плоскости диаграммы пересечение линии нулевого уровня как раз и означает подавление соответствующей гармоники отклика. Отметим, что для рассматриваемой системы, как и для осцилляторов из работ [1,2], линии нулевого уровня первых двух гармоник тривиальны и совпадают с осями координат на плоскости (α, ξ_0) , т.е. первая и вторая гармоники не поддаются селективному подавлению.

В работах [1,2] ШР был определен как вызываемое изменением интенсивности шума избирательное подавление старших гармоник отклика в системе, возбуждаемой полем малой интенсивности. На рисунке эта область параметров заключена в узкой полосе $\alpha \ll 1$, прилегающей к оси ξ_0 . Расчет на основе уравнений (5) свободен от этих ограничений и позволяет описать поведение системы при любых уровнях возбуждения. Как следует из рисунка, ШР имеет место и при $\alpha > 1$, т.е. в существенно нелинейной области. При этом чем выше амплитуда возбуждения, тем меньше становятся углы наклона линий нулевого уровня $\alpha_k = \alpha_k(\xi_0)$ по отношению к прямым $\alpha = \text{const}$, означающим изменение температуры системы.

Покажем, что в адиабатическом пределе все линии нулевого уровня насыщаются при $\xi_0 \rightarrow \infty$. Для этого заметим, что уравнения искомым асимптот $\alpha_k(\xi_0 = \infty)$ получаются из условия обращения в нуль k -го коэффициента ряда Фурье функции Ланжевена $L[\xi_0(1 + \alpha \cos x)]$ по $\cos(ns)$. Заменяя для оценок функцию L ступенчатой, получаем

$$\alpha_k(\infty) = \sec(\pi/k), \quad (k \geq 3). \quad (8)$$

Эта величина максимальна для третьей гармоники ($\alpha_3(\infty) = 2$) и убывает до единицы при $k \rightarrow \infty$.

Согласно формуле (8), с приближением уровня возбуждения к $\alpha_k(\infty)$ снизу происходит "температурная стабилизация" шумового резонанса k -й гармоники: интервал

по параметру ξ_0 , где намагниченность m_k близка к нулю, неограниченно расширяется. Из рисунка в согласии с (8) следует также, что шумовой резонанс исчезает в области $\alpha > \alpha_k(\infty)$.

Конфигурация "долин" — линий минимума амплитуд m_k — на диаграммах рисунка подсказывает альтернативный ШР вариант избирательного подавления старших гармоник. Используем в качестве управляющего параметра не температуру (ξ_0), а амплитуду возбуждающего поля α . На диаграммах рисунка такому воздействию соответствуют траектории, параллельные оси α . Видно, что некоторая прямая $\xi_0 = C = \text{const}(\alpha)$ обязательно пересекает линию нулевого уровня, если только значение C принадлежит интервалу (ξ_{0k}, ∞) .¹ Таким образом, управление спектром достигается изменением не температуры (шум), а интенсивности регулярного воздействия (сила). Это и есть проявление СР.

На линиях нулевого уровня рисунка можно легко, хотя и не строго, выделить три области: быстрый рост, кроссовер и насыщение, описываемое асимптотикой (8). Сравнивая сечения этих участков прямыми, параллельными осям координат рисунка, приходим к выводу, что на участке быстрого роста имеются резкий ШР и широкий СР, в кроссоверной части ширины обоих резонансов соизмеримы и на участке насыщения возникает комбинация узкого СР и ШР с неограниченно растущей шириной.

Подведем итог. Показана возможность избирательного подавления старших (начиная с третьей) гармоник при вынужденных низкочастотных колебаниях дипольного момента суперпарамагнитной частицы. Эффект может быть достигнут двумя независимыми путями: либо за счет изменения уровня шума (шумовой резонанс [1,2]), либо при варьировании интенсивности возбуждения (силовой резонанс). Конкретными физическими системами, к которым прямо относятся результаты выполненного расчета, являются дисперсии магнитоизотропных наночастиц в твердой матрице и магнитные жидкости — коллоидные суспензии однодоменных частиц. В последнем случае магнитная анизотропия произвольна, поскольку наличие вращательных механических степеней свободы частиц приводит к ее эффективному "выключению" в низкочастотном диапазоне [18]. Очевидно, что при замене магнитных величин на их электрические аналоги развитое описание полностью переносится на нелинейную поляризацию в полярных жидкостях и коллоидах. В общетеоретическом плане полученные результаты дают основание предположить, что сочетание шумового и силового резонансов является универсальной чертой поведения любого нелинейного осциллятора с шумом.

Важно заметить, что полидисперсность реальных магнитных наносистем должна существенно по-разному

¹ Через ξ_{0k} обозначена координата точки, в которой линия нулевого уровня k -гармоники отвечает от оси ξ_0 . В адиабатическом пределе величина ξ_{0k} находится через $(k + 1)$ -й кумулянт равновесной ($\xi = 0$) функции распределения системы как корень уравнения $Q_{k+1}(\xi_{0k}) = 0$ [2].

влиять на возможность экспериментального наблюдения ШР и СР. В самом деле, в ситуации ШР амплитуда некоторой гармоники минимизируется в результате варьирования параметра ξ_0 . Последний, согласно (4), пропорционален объему частицы. Очевидно, что в полидисперсной системе вместо одного критического значения возникнет целый интервал ξ_0 , и эффект ШР будет либо значительно "размазан" по сравнению с рассмотренным выше монодисперсным случаем, либо вовсе исчезнет. В ситуации СР изменяемым параметром является отношение $\xi/\xi_0 = H_1/H_0$, которое, как следует из определений (4), не зависит от размера частицы. Поскольку в области $\xi_0 > 2$ участки линий нулевого уровня на рисунке практически параллельны оси абсцисс, заключаем, что условия наступления СР слабо зависят от параметра ξ_0 , чувствительного к полидисперсности. Таким образом, в полидисперсной суперпарамагнитной системе силовой резонанс любой k -й гармоники намагничивания — участок минимума функции $m_k(\alpha)$ — не должен заметно расширяться по сравнению с его монодисперсным прототипом, рассмотренным выше.

Покажем, что диапазон характерных параметров, при которых должны наблюдаться описанные выше эффекты, вполне доступен. В самом деле, согласно приведенным графикам, явления ШР и СР отчетливо проявляются для $\xi_0 > 1$ и $\alpha \sim 1$ при частотах $\omega\tau \ll 1$. Рассмотрим для оценки систему частиц гамма окиси железа с характерным размером $a \sim 10$ nm; намагниченность материала $I \approx 400$ G. Из формул (4) следует, что при комнатной температуре ξ_0 становится порядка единицы в постоянном поле $H_0 \sim T/\pi I a^3 \sim 200$ Oe. Того же порядка в силу соотношения $\alpha = \xi/\xi_0 = h_1/H_0$ должна быть и амплитуда H_1 переменного поля. Что же касается верхней границы частотной полосы, то выбирая для рассматриваемых наночастиц $\lambda \sim 0.1$ и полагая гиромагнитное отношение $\gamma \sim 2 \cdot 10^7$ Oe \cdot s $^{-1}$ (электроны), находим $\omega \approx 12\lambda\gamma T/\pi I a^3 \sim 10^5$ s $^{-1}$.

Отметим, что еще до появления работ [1,2] эффект, который сейчас можно назвать силовым резонансом по ориентационному параметру порядка $\langle P_2 \rangle$, был найден авторами [20,21] при теоретическом анализе индуцированного двулучепреломления в дипольных коллоидах.

Авторы признательны Ю.П. Калмыкову за ценные обсуждения.

Список литературы

- [1] R. Bartussek, P. Hanggi, P. Jung. Phys. Rev. **E49**, 5, 3930 (1994).
- [2] P. Jung, P. Talkner. Phys. Rev. **E51**, 3, 2640 (1995).
- [3] M.E. Inchiosa, A.R. Bulsara. Phys. Rev. **E58**, 1, 115 (1998).
- [4] K. Loerincz, Z. Gingl, L.B. Kiss, A.R. Bulsara. Phys. Lett. **A254**, 4, 154 (1999).
- [5] L. Gammaitoni, P. Hanggi, P. Jung, F. Marchesoni. Rev. Mod. Phys. **70**, 1, 223 (1998).
- [6] W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, N. Demoncy, A. Loiseau, H. Pascard, D. Mailly. Phys. Rev. Lett. **78**, 9, 1791 (1997).
- [7] H. Casalta, P. Schleger, C. Bellouard, M. Hennion, I. Mirebeau, G. Ehlers, B. Farago, J.-L. Dormann, M. Kelsch, M. Linde, F. Philipp. Phys. Rev. Lett. **82**, 7, 1301 (1999).
- [8] А.Н. Григоренко, В.И. Конов, П.И. Никитин. Письма в ЖЭТФ **52**, 11, 1182 (1990).
- [9] Э.К. Садыков. ФТТ **33**, 11, 3302 (1991).
- [10] E.K. Sadykov. J. Phys.: Condens. Matter **4**, 3295 (1992).
- [11] A. Perez-Madrid, J.M. Rubi. Phys. Rev. **E51**, 5, 4159 (1995).
- [12] Yu.L. Raikher, V.I. Stepanov. Phys. Rev. **B52**, 5, 3493 (1995).
- [13] J.M.G. Vilar, A. Perez-Madrid, J.M. Rubi. Phys. Rev. **E54**, 6, 6929 (1996).
- [14] Yu.L. Raikher, V.I. Stepanov, A.N. Grigorenko, P.I. Nikitin. Phys. Rev. **E56**, 6, 6400 (1997).
- [15] Yu.L. Raikher, V.I. Stepanov. Phys. Rev. **B57**, 22, 15 005 (1997).
- [16] Ю.П. Калмыков, С.В. Титов. ФТТ **40**, 9, 1642 (1998).
- [17] W.F. Brown, jr. Phys. Rev. **130**, 5, 1677 (1963).
- [18] Yu.L. Raikher, M.I. Shliomis. Adv. Chem. Phys. **87**, 595 (1994).
- [19] Э.К. Садыков, А.Г. Исавнин. ФТТ **38**, 7, 2104 (1996).
- [20] Ю.Л. Райхер, С.В. Бурьлов, В.И. Степанов. Письма в ЖЭТФ **47**, 5, 273 (1988).
- [21] Yu.L. Raikher, V.I. Stepanov, S.V. Burylov. J. Colloid & Interface Sci. **144**, 2, 308 (1991).