

ВЛИЯНИЕ РАЗМАГНИЧИВАЮЩЕГО ФАКТОРА НА НАМАГНИЧИВАНИЕ АНСАМБЛЯ СТОНЕР-ВОЛЬФАРТОВСКИХ ЧАСТИЦ

В. М. Калита, А. А. Тимофеев, С. М. Рябченко*

*Институт физики Национальной академии наук Украины
03028, Киев, Украина*

Поступила в редакцию 8 июня 2010 г.

В приближении релаксационной модели с самосогласованным определением поля размагничивания исследовано влияние размагничивающего фактора на коэрцитивность образца, состоящего из ориентированных одноосных стонер-вольфартовских частиц. Показано, что размагничивающее поле изменяет условия перемагничивания частиц, снижает температуру блокировки и величину коэрцитивной силы, для которой, несмотря на учет размагничивающего поля, выполняется соотношение Нееля – Броуна. Также показано, что размагничивающее поле приводит к тому, что при намагничивании в постоянном внешнем поле после охлаждения при его отсутствии (ZFC) внутреннее магнитное поле, в котором находятся частицы, не является стационарным, а изменяется во времени согласовано с временной разверткой температуры. Нестационарность внутреннего поля в режиме ZFC приводит к увеличению интервала температур перехода частиц ансамбля от заблокированного состояния к состоянию с равновесным намагничиванием.

1. ВВЕДЕНИЕ

Исследования систем, состоящих из ферромагнитных (ФМ) однодоменных наночастиц, вызывают большой интерес. В состоянии равновесия такие системы намагничиваются суперпарамагнитно [1–4]. При блокировке анизотропией термоактивированной переориентации магнитных моментов частиц намагничивание ансамбля будет иметь гистерезис [5]. В системах с ФМ-наночастицами может наблюдаться гигантское магнитосопротивление [6, 7].

Если для анизотропных ФМ-наночастиц выполняется критерий однодоменности, то они находятся в однодоменном (однородном) состоянии в отсутствие магнитного поля. Однородность состояния сохраняется и при перемагничивании частицы, если ее параметры удовлетворяют критерию абсолютной однодоменности [8–10]. Тогда вращение ее спинов происходит однородно (когерентно) и перемагничивание через неоднородное магнитное состояние (например, через закручивание направления магнитного момента в частице (curling) [11, 12]) не будет. Ансамбль одинаковых одноосных магнитных частиц с одинаково направленными осями анизотропии, удо-

влетворяющих критерию абсолютной однодоменности, называют ансамблем стонер-вольфартовских (СВ) [13] частиц.

При температуре $T < T_b$, где T_b — температура блокировки, перемагничивание ансамбля СВ-частиц во внешнем магнитном поле, вводимом за конечное время, осуществляется неравновесно с петлей гистерезиса [1, 14, 15]. Величина T_b , а также величина коэрцитивной силы $H_c(T)$ зависят от магнитных свойств частиц и от продолжительности времени измерения [1, 3, 5, 16, 17]. Величина T_b может также зависеть от межчастичного взаимодействия [18].

Магнитные моменты отдельных частиц в их ансамбле взаимодействуют между собой, как минимум, благодаря диполь-дипольному взаимодействию. Для ансамбля, имеющего внешнюю форму эллипсоида вращения, это взаимодействие будет включать однородную часть, описываемую полем размагничивания. Его величина определяется средней намагниченностью ансамбля [19–22] и формой образца. В ансамбле с произвольной внешней формой поле размагничивания будет зависеть от положения гранулы относительно границ образца. Кроме указанной однородной части, диполь-дипольное взаимодействие будет создавать и некоторое микро-

*E-mail: timopheev@iop.kiev.ua, timopheev@ukr.net

скопически неоднородное локальное поле на каждой из частиц, могущее влиять на взаимную корреляцию направлений магнитных моментов частиц ближайшего окружения. При случайном расположении частиц друг относительно друга эта составляющая локального поля будет различной для разных частиц ансамбля. Эта неоднородная часть локального поля будет к тому же флуктуирующей из-за взаимной реориентации магнитных моментов отдельных частиц при отсутствии их взаимного магнитного упорядочения при достаточно высокой температуре.

В данной работе изучается влияние именно размагничивающего поля на намагничивание ансамбля СВ-частиц. Используя приближение релаксационной модели, мы покажем, что размагничивающее поле изменяет форму петли гистерезиса ансамбля СВ-частиц, влияет на величину T_b и на зависимость $H_C(T)$. Будет также показано, что размагничивающее поле изменяет характер температурной зависимости намагниченности, получаемой в режиме ZFC. Насколько известно авторам, ранее такие задачи для ансамбля СВ-частиц не рассматривались. Однако они актуальны для пленок с частицами, магнитная анизотропия которых перпендикулярна плоскости пленки [23–28] или наклонена к ней [29, 30]: системы с такой ориентацией магнитных частиц рассматриваются как перспективные для увеличения плотности магнитной записи (perpendicular magnetic recording). Рассматривая действие размагничивающего поля образца, будем полагать, что внешняя форма образца-ансамбля описывается эллипсоидом вращения, т. е. размагничивающее поле однородно, и будем пренебрегать микроскопически неоднородной частью локального поля диполь-дипольного взаимодействия. Последнее приближение будет оправдываться тем, что мы ограничим рассмотрение областью температур, при которых взаимные корреляции направлений магнитных моментов частиц не существенны и флуктуации, связанные с термически-индуцированными переориентациями магнитных моментов, эффективно усредняют эти составляющие локального поля.

2. МОДЕЛЬ

Рассмотрим ансамбль СВ-частиц в магнитном поле, направленном вдоль их одинаково ориентированных легких осей анизотропии (ось легкого намагничивания). Пусть линейные размеры образца много больше размеров частиц (гранул) и он име-

ет форму эллипсоида с главными осями X , Y , Z . При этом гранулы своими легкими осями намагничивания ориентированы вдоль одной из этих осей, которую обозначим Z . Будем рассматривать случай, когда внешнее магнитное поле H_e также направлено вдоль этой оси $H_e \parallel Z$. Учтем, что на гранулы, кроме H_e , действует размагничивающее поле, величина которого равна произведению zz -компоненты тензора размагничивающего фактора образца на проекцию его средней намагниченности в направлении Z : $H_m = -N_z f_v m$. Здесь N_z — zz -компонента размагничивающего фактора. В избранной конфигурации осей N -тензор будет диагонален с компонентами $N_{zz} \equiv N_z$, $N_{xx} \equiv N_x$, $N_{yy} \equiv N_y$. Величина f_v — коэффициент заполнения объема образца гранулами (предполагается, что заполнение образца гранулами однородно), m — проекция на ось Z средней намагниченности в расчете на одну гранулу образца (при этом намагниченность образца в целом равна $f_v m$).

Плотность магнитной энергии одной частицы в ансамбле для рассматриваемой ориентации легких осей гранул и внешнего поля запишем в виде

$$U = -K \cos^2 \theta - M_p (H_e + H_m) \cos \theta, \quad (1)$$

где $K > 0$ — константа анизотропии, M_p — абсолютная величина намагниченности частицы, одинаковая для всех СВ-частиц, θ — угол между вектором намагниченности и вектором суммарного поля $H_e + H_m$, в котором находится частица.

Магнитостатическое поле H_m является следствием диполь-дипольного межчастичного взаимодействия. Поэтому диполь-дипольное взаимодействие при определенных условиях [31] может приводить к суперферромагнитному состоянию с одинаковым направлением магнитных моментов частиц [32, 33]. Кроме того, неоднородность дипольного взаимодействия ближайших частиц при их случайном расположении может приводить к значительному разбросу локального поля, что может вызывать возникновение при низких температурах суперспинстекольного состояния [32]. В работе [34] обсуждался вопрос о возможности антиферромагнитных корреляций направлений магнитных моментов ближайших соседних частиц в ансамбле нанопроволочек, ориентированных перпендикулярно подложке. Поэтому приближение (1) применимо к системам неперколированных частиц при температурах выше температуры возникновения суперферромагнитного или суперспинстекольного состояний, в случае, когда величина разброса локального поля, порожденного дипольным взаимодействием, заметно меньше поля анизотропии частиц и магнитостатического по-

ля размагничивания. Заметим, что, как показывает дополнительный анализ, учет разброса локального поля приведет к искажению кривых перемагничивания, сделает на кривой намагничивания более плавным переход к насыщению.

Образец, состоящий из ФМ-наногранул, находится в многодоменном состоянии. Каждая гранула является доменом с магнитным моментом, направленным вдоль (или противоположно) оси анизотропии. Перемагничивание такого образца в поле H_e , направленном вдоль оси анизотропии гранул, происходит за счет опрокидывания их магнитных моментов. Для гранул с размерами, меньшими абсолютного предела однодоменности, опрокидывание должно происходить путем однородного поворота магнитного момента. При блокировке анизотропией магнитных моментов однодоменных частиц равновесие за время наблюдения не устанавливается.

Процесс перемагничивания системы частиц с энергией (1) можно описать с помощью релаксационного уравнения:

$$\frac{\partial m(t)}{\partial t} = \frac{1}{\tau_r} [m_\infty - m(t)], \quad (2)$$

где $m(t)$ — текущая величина средней по ансамблю намагниченности гранул образца, m_∞ — ее равновесная величина, а τ_r — время релаксации.

Время релаксации τ_r намагниченности в ансамбле СВ-частиц модели Нееля [1] может быть описано законом Аррениуса:

$$\tau_r = \tau_0 \left\{ \exp \left(-\frac{M_p(H_e - N_z f_v m - H_a)^2 V}{2H_a kT} \right) + \exp \left(-\frac{M_p(H_e - N_z f_v m + H_a)^2 V}{2H_a kT} \right) \right\}^{-1}, \quad (3)$$

где $H_a = 2K/M_p$ — поле анизотропии, k — постоянная Больцмана, T — температура, V — объем частицы, τ_0 — время, величина которого обратно пропорциональна частоте прецессии магнитного момента частицы в поле H_a и которое в различных магнитных системах принимает значение наносекундного порядка [35] (в литературе приводятся цифры в интервале $\tau_0 \sim 10^{-12}$ – 10^{-8} с). Показатели экспоненты выражаются через отношение величины энергетического барьера для опрокидывания магнитного момента частицы во внутреннем поле, равном разности $H_i = H_e - N_z f_v m$, к энергии тепловой активации. В уравнении (3) поле H_a является одночастичным параметром, а m (т. е. H_m) определяется средней по ансамблю намагниченностью частиц. В результате время релаксации одной частицы зависит от состояния частиц всего ансамбля.

Равновесная намагниченность в этой модели двух возможных дискретных ориентаций магнитного момента частицы в поле ее анизотропии определяется выражением

$$m_\infty = M_p \operatorname{th} \frac{[H_e - N_z f_v m(t)] M_p V}{kT}. \quad (4)$$

Как видно, равновесная намагниченность $m_\infty = m_\infty(H_e, m(t), T)$ в данном случае оказывается функцией не только внешнего поля, но и текущей намагниченности, от которой зависит поле размагничивания.

Выражение (4) не содержит вклада от анизотропии частиц, что отвечает изинговскому приближению, которое для одноосных частиц хорошо выполняется при $kT < KV$, что, в обычном случае, выполняется для температур, не превышающих более чем в 2–3 раза температуру блокировки ансамбля.

Из формулы (4) следует, что в состоянии равновесия при намагничивании ансамбля $m = m_\infty$ компенсация внешнего и размагничивающего полей ($H_e - N_z f_v m = 0$) при конечных температурах не должна достигаться. Это качественно отличает намагничивание ансамбля наночастиц от намагничивания сплошного многодоменного ферромагнетика, описываемого в континуальном приближении. В равновесном многодоменном состоянии однородного (сплошного) одноосно-анизотропного ферромагнитного образца, имеющего форму эллипсоида вращения, одна из главных осей которого совпадает с легкой осью анизотропии, сумма внешнего поля, направленного вдоль легкой оси, и размагничивающего поля должна быть равна нулю: $\mathbf{H}_e + \mathbf{H}_m = 0$ [36]. Если в многодоменном состоянии $\mathbf{H}_e + \mathbf{H}_m \neq 0$, то ненулевое результирующее поле будет создавать силу, действующую на доменные стенки. При отсутствии пиннинга стенок (идеальный случай) это будет приводить к непрерывному безактивационному перемещению доменных стенок, пока не будет достигнута компенсация: $\mathbf{H}_e + \mathbf{H}_m = 0$. При пиннинге доменных стенок необходимо учитывать термоактивационное преодоление пиннинга и/или термоактивационное образование зародышей фазы с намагниченностью, направленной вдоль магнитного поля. Термоактивационное опрокидывание магнитных моментов доменов при этом не является актуальным.

Таким образом, перемагничивание ансамбля СВ-частиц, описываемое в модели (1)–(4), определяется процессом дискретного термоактивированного опрокидывания магнитных моментов отдельных частиц-доменов, помещенных в суммарное внешнее и размагничивающее поле, в отличие от перемагни-

чивания сплошного ферромагнитного образца. Это и приводит к различию условий компенсации внешнего поля и поля размагничивания, отмеченному выше.

Релаксационная модель, подобная (2)–(4), но без учета действия размагничивающего поля была проанализирована в ряде работ (например, [37, 38]). Возможность учета размагничивающего поля в процедуре самосогласованного определения намагниченности ансамбля рассмотрена в работе [39].

Описание влияния размагничивающего поля на намагниченность $m(t)$ с использованием релаксационной модели (2)–(4) имеет, как минимум, две не обсуждавшиеся достаточным образом в литературе, но важные для эксперимента особенности. Наличие H_m увеличивает интервал полей, который надо пройти для перемагничивания образца в режиме измерений с постоянной скоростью развертки магнитного поля, и увеличивает тем самым «время наблюдения» для перемагничивания образца. Кроме того, как следует из уравнений (2)–(4), действие H_m нелинейно, оно самосогласованным образом влияет на равновесную намагниченность (4) и делает время релаксации отдельной частицы зависимым от состояния ансамбля (3).

3. ВЛИЯНИЕ РАЗМАГНИЧИВАЮЩЕГО ПОЛЯ НА ПЕТЛИ ГИСТЕРЕЗИСА

Система уравнений (2)–(4) сложна для аналитического решения, поэтому ее решения были получены численно. На рис. 1 показаны рассчитанные петли гистерезиса для перемагничивания ансамбля

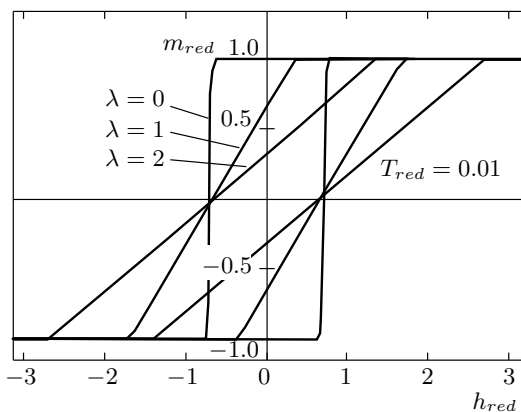


Рис. 1. Модельные кривые перемагничивания ансамбля СВ-частиц в заблокированном состоянии при разных значениях параметра λ

СВ-частиц при $H_e \parallel Z$, полученные при разных соотношениях $(H_m)_{max} = N_z f_v M_p$ и H_a для температуры ниже, чем температура блокировки. В расчете предполагалось, что развертка магнитного поля осуществляется равномерно с постоянной скоростью v_H , т. е. $H_e = \pm H_0 \mp v_H t$, где верхний знак отвечает выводу магнитного поля с изменением его знака от H_0 до $-H_0$, после чего скорость развертки изменяется на противоположную и далее вводится поле от $-H_0$ до H_0 . При расчетах бралось $H_0 \geq H_a + N_z f_v M_p$. Метод такого расчета описан в работе [38]. Графики на рис. 1 построены для безразмерных величин. Средняя намагниченность гранул нормирована на ее максимальное значение $m_{red} = m/M_p$, внешнее магнитное поле (и аналогично другие фигурирующие в задаче поля) нормировано на поле анизотропии $h_e = H_e M_p / 2K \equiv H_e / H_a$, т. е. $h_a \equiv 1$, температура нормирована на энергию анизотропии частицы $T_{red} = kT / KV$. Время также нормировано: $t_{reg} = t / \tau_0$. Размагничивающее поле задано с помощью безразмерного параметра $\lambda = N_{zz} f_v M_p^2 / 2K = (H_m)_{max} / H_a$.

Интервал магнитных полей $|H_e| > |H_a + N_z f_v M_p|$ соответствует пребыванию системы в состоянии насыщения намагниченности, а при меньших полях протекает процесс ее перемагничивания. Поэтому для приведенных на рис. 1 петель с разными значениями размагничивающего поля время перемагничивания будет разным. Оно увеличивается с ростом величины λ . Для сокращения машинного времени, необходимого для вычислений, расчеты петель перемагничивания, показанные на рис. 1, проведены для довольно высокой скорости ввода поля, при которой поле, равное по величине H_a , вводилось за время $t = 10^6 \tau_0$, т. е. для $v_H = H_a / 10^6 \tau_0$. Примера расчета $m(t)$ с такой скоростью развертки поля достаточно для иллюстрации влияния релаксации на перемагничивание. Конечно, время перемагничивания при этом оказывается значительно меньше времен, которые используются при реальных магнитостатических измерениях. Однако можно утверждать, что увеличение времени измерения (снижение расчетной скорости развертки до величин, соответствующих реальным экспериментам) качественно не изменит полученных зависимостей для $m(t)$. Количественные же различия отразятся лишь в абсолютных значениях отношений коэрцитивных полей h_c (в безразмерных единицах для поля), получаемых при конкретной температуре T_{red} , к величине $h_c = 1$, которая должна иметь место для $T_{red} = 0$. Укажем, что при избранной скорости развертки магнитного поля значение температуры блокировки (в указан-

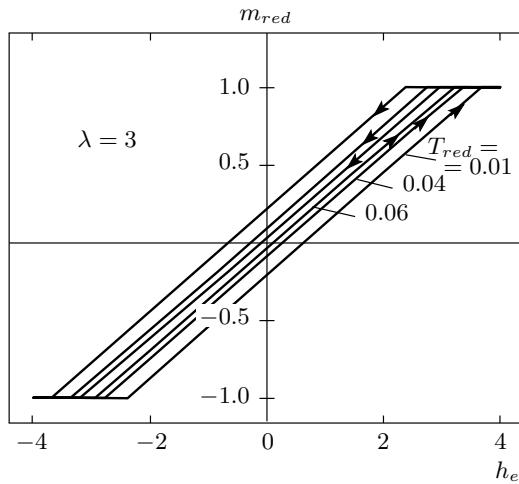


Рис. 2. Модельные кривые перемагничивания ансамбля СВ-частиц в заблокированном состоянии при разных температурах $T_{red} < T_b^{red}$. Скорость развертки поля указана в тексте

ных безразмерных единицах) должно при $\lambda = 0$ соответствовать $T_b^{red} = 0.11$ в то время как расчеты, результаты которых показаны на рис. 1, выполнены для $T_{red} = 0.01$.

Заметим, что $\lambda = 0$ отвечает возможным случаям, когда образец имеет форму бесконечно длинного цилиндра ($N_z = 0$), а частицы легкими осями ориентированы вдоль его оси, или образец имеет форму тонкой пленки, а оси анизотропии частиц ориентированы в ее плоскости ($N_z = 0$). Если частицы ориентированы своими легкими осями перпендикулярно плоскости пленки ($N_z = 4\pi$), то $\lambda \neq 0$.

Из кривых, приведенных на рис. 1, видно, что для $T < T_b$ ($T_{red} < T_b^{red}$) при $\lambda \neq 0$ петля гистерезиса представляет собой две параллельные прямые, наклоненные к оси h_{red} , причем эти прямые сдвинуты относительно прямой равновесного при $T = 0$ намагничивания на величину коэрцитивной силы $\pm h_c(T_{red}/T_b^{red})$. При $\lambda = 0$ ($(H_m)_{max} = 0$) в точке $H_e = H_c$ происходит практически одномоментное опрокидывание магнитных моментов всех частиц ансамбля. При $(H_m)_{max} \neq 0$ магнитные моменты частиц опрокидываются (индивидуально, хотя в случайном порядке, так чтобы поддерживалось соответствие между h_{red} и $m_{red}(h_{red}, T_{red}, T_b^{red})$) на большем временном интервале (большем интервале внешних полей).

На рис. 2 показаны расчетные зависимости $m_{red}(h_{red})$ при разных температурах T_{red} . В этом расчете использовалась та же скорость ввода по-

ля, что и для кривых на рис. 1. Видно, что при повышении температуры «наклоненные» участки $m_{red}(h_{red})$ неравновесного намагничивания сближаются между собой, сохраняя наклон и оставаясь параллельными друг другу, т.е. уменьшается величина $h_c(T_{red}/T_b^{red})$. Качественный вид петель гистерезиса при $T_{red} < T_b^{red}$ практически не изменяется.

Таким образом, в приближении релаксационной модели получено, что при $T < T_b$ и $(H_m)_{max} \neq 0$ ($\lambda \neq 0$) практически на всем интервале перемагничивания опрокидывание магнитных моментов частиц происходит почти равномерно на интервале перемагничивания, а намагниченность в точке $H_e = H_c$ изменяется непрерывно. Это является следствием действия размагничивающего поля.

Петли гистерезиса, приведенные на рис. 1 и 2, хорошо согласуются с экспериментальными петлями намагничивания гранулярных пленок [34, 40]. В работе [34] также приведены полученные методом Монте-Карло расчеты кривых перемагничивания при учете межчастичного дипольного взаимодействия. Следует отметить, что в этой работе диполь-дипольное взаимодействие учитывалось полностью, без разделения его влияния на однородное поле размагничивания и его микроскопически неоднородную часть. Хотя понятие «поля размагничивания» в этой работе не использовалось, эти расчеты, о чем уже говорилось выше, демонстрируют его влияние, проявляющееся в изменении наклона кривых намагничивания при увеличении размагничивающего фактора образца. Кроме того, из этих расчетов видно и проявление неоднородного локального поля, которое модифицирует петли z-образного вида в s-образные, сглаживая переход к насыщенному состоянию. Авторы работы [34] обсуждают также взаимные корреляции направлений моментов ближайших соседних нанопроволок, обусловленные микроскопической неоднородной частью дипольного взаимодействия. Однако приводимое ими распределение направлений моментов проволочек не сильно отличается от случайного, т.е. в их случае роль данного обстоятельства не велика.

Когда $H_m \neq 0$, на каждую частицу ансамбля действуют поля H_e и H_m . На участках с насыщенной намагниченностью $m(t) = \pm M_p$ на частицы действует максимальное размагничивающее поле $(H_m)_{max}$, а величина внутреннего поля равна $H_i = H_e - N_z f_v M_p$. На этих участках скорость изменения внутреннего поля равна скорости изменения внешнего поля. В этих полях при $|H_e| > H_a + N_z f_v M_p$ частица имеет только один ми-

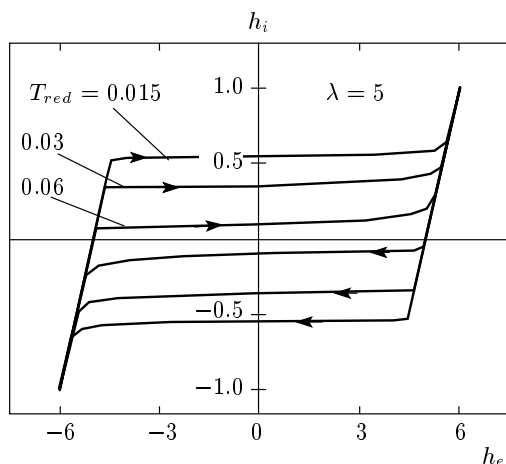


Рис. 3. Зависимость внутреннего поля h_i от величины внешнего поля h_e при перемагничивании ансамбля СВ-частиц при разных температурах для $\lambda = 5$ с постоянной скоростью развертки внешнего поля

нимум энергии с магнитным моментом, направленным вдоль поля. При выводе поля, когда оно лежит в интервале $N_z f_v M_p < |H_e| < H_a + N_z f_v M_p$, частица имеет два минимума энергии, при этом меньшему значению энергии частицы отвечает минимум с магнитным моментом, направленным вдоль поля. Когда $H_e = (H_m)_{max}$, энергии частицы в точках минимумов становятся одинаковыми. В этой точке при $T < T_b$ поле анизотропии блокирует установление равновесия между количеством частиц, соответствующих этим двум минимумам.

В интервале $N_z f_v M_p - H_c < |H_e| < N_z f_v M_p$ меньшему значению энергии частицы отвечает минимум с магнитным моментом, направленным противоположно внешнему магнитному полю. Однако на этом интервале эффект блокировки магнитного момента частицы сохраняется, поэтому при выводе поля на участке $|H_e - (H_m)_{max}| < H_c$ намагниченность практически равна предельной.

При подходе к области значений поля $|H_e| \approx (H_m)_{max} - H_c$, когда внутреннее поле становится близким к коэрцитивному $|H_i| \approx H_c$, также не происходит мгновенной разблокировки магнитных моментов частиц. Несмотря на дальнейшее уменьшение поля H_e , внутреннее поле при $T < T_b$ на участке линейного перемагничивания изменяется незначительно: $H_i \approx \text{const}$ (см. рис. 3). На этом участке время релаксации (3) также будет практически неизменным.

На рис. 3 показаны графики зависимости внутреннего поля h_i от величины внешнего h_e . Скорость

ввода поля в этом расчете такая же, как и для рис. 1 и 2. Заметим, что поскольку внешнее поле протягивается в нашей модели с постоянной скоростью, кривые рис. 3 можно рассматривать как кривые зависимости внутреннего поля от времени в процессе перемагничивания. Кривые этого типа, построенные для различных λ , хорошо иллюстрируют, как меняется с λ временной режим изменения внутреннего поля при одной и той же скорости протяжки внешнего поля. Это отражается на различном проявлении метастабильности заблокированного состояния суперпарамагнитного ансамбля частиц при разных λ .

Таким образом, размагничивающее поле образца приводит к изменению условий перемагничивания частиц. В процессе перемагничивания появляется значительный временной интервал, на котором внутреннее поле, в котором находятся частицы, остается почти неизменным. Это должно неким образом влиять на величину температуры блокировки T_b и, как следствие, на величину коэрцитивной силы ансамбля.

4. КОЭРЦИТИВНАЯ СИЛА, ТЕМПЕРАТУРА БЛОКИРОВКИ И ОСТАТОЧНАЯ НАМАГНИЧЕННОСТЬ

На рис. 4 представлены результаты численных расчетов зависимостей $h_c(T_{red})$ для разных λ . В

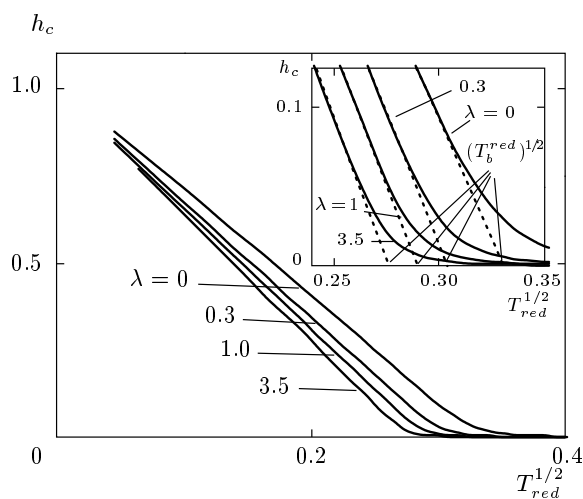


Рис. 4. Модельные температурные зависимости коэрцитивного поля $h_c(T_{red})$ для разных значений максимального размагничивающего поля λ и при одной и той же скорости ввода магнитного поля. Штриховыми линиями на вставке показан ход зависимости (5)

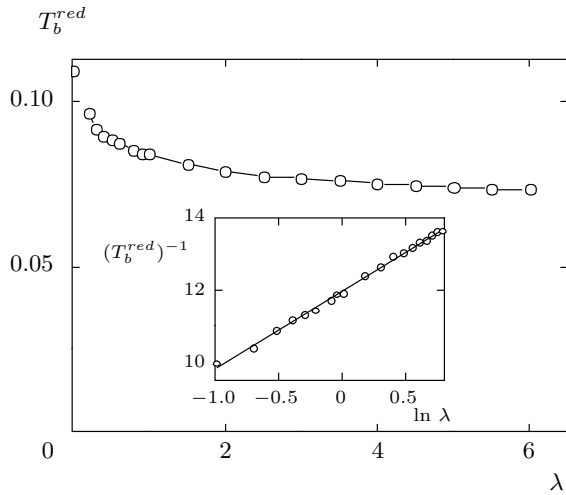


Рис. 5. Модельная зависимость температуры блокировки $T_b^{red}(\lambda)$, рассчитанной для одной и той же скорости введения магнитного поля. На вставке показана зависимость $(T_b^{red}(\ln \lambda))^{-1}$

этих расчетах скорость ввода поля была выбрана такой же, как и для расчетов, показанных на рис. 1–3. Величина T_b^{red} находилась путем экстраполяции в нуль участков кривых $h_c(T_{red})$, пропорциональных $\sqrt{T_{red}}$. Как видно на рисунке, найденная таким способом величина T_b^{red} уменьшается с ростом λ . В то же время из рис. 4 следует, что для всех значений λ температурная зависимость $h_c(T_{red})$ (т. е. и $H_c(T)$) имеет вид

$$h_c(T) = h_a \left(1 - \sqrt{T_{red}/T_b^{red}(\lambda)} \right) \tag{5}$$

или

$$H_c(T) = H_a \left(1 - \sqrt{T/T_b(\lambda)} \right),$$

соответствующий известному соотношению Нелея–Броуна для коэрцитивного поля при $0 < T < T_b$, но с T_b , зависящей от λ .

На рис. 5 приведена зависимость $T_b^{red}(\lambda)$, полученная из численного расчета с той же скоростью протяжки магнитного поля $v_H = H_a/10^6\tau_0$, что и для рис. 1–4. Видно, что с ростом величины максимального размагничивающего поля λ величина T_b^{red} (а значит, и T_b) несколько уменьшается. Это уменьшение $T_b^{red}(\lambda)$ имеет при больших $\lambda > 1$ логарифмический характер, о чем свидетельствует линейный ход зависимости $(T_b^{red}(\ln \lambda))^{-1}$ (см. вставку на рис. 5).

Определим t_i как время ввода поля H_e , равного по величине полю анизотропии, $t_i = H_a/v_H$. При $\lambda = 0$ такое t_i имеет смысл времени из-

мерения (времени перемагничивания). В случае $\lambda \neq 0$ полное время перемагничивания будет равно $(H_a + (H_m)_{max})t_i/H_a$. Положим, что в точке $H_e = H_c$ время релаксации (3) равно этому времени, рассматриваемому как время измерения

$$\tau_r = \frac{H_a + (H_m)_{max}}{H_a} t_i.$$

Ограничимся также учетом только первой экспоненты в знаменателе выражения (3) для τ_r , что справедливо при $T \rightarrow 0$. В результате получим соотношение типа Нелея–Броуна для температурной зависимости $H_c(\sqrt{T})$, имеющее вид (5). Температура блокировки при этом будет зависеть от размагничивающего фактора:

$$T_b(\lambda) \approx \frac{KV}{k \ln \left(\frac{H_a + (H_m)_{max}}{H_a} \frac{t_i}{\tau_0} \right)} = T_b(\lambda = 0) \left(1 + \frac{\ln(1 + \lambda)}{\ln(t_i/\tau_0)} \right)^{-1}. \tag{6}$$

Выражение (6) качественно объясняет полученную при численных расчетах логарифмическую зависимость T_b от λ , показанную на вставке к рис. 5. Из выражения (6) следует, что влияние размагничивающего поля на величину T_b сильно уменьшается при уменьшении скорости ввода поля (при росте $\ln(t_i/\tau_0)$). Таким образом, если использовать для расчета не такую высокую скорость ввода поля, как использована в расчетах рис. 1–5, со значением $\ln(t_i/\tau_0) = \ln(10^6) \approx 14$, а соответствующую реальным магнитостатическим измерениям $\ln(t_i/\tau_0) \approx 25$, то реальная зависимость $T_b(\lambda)$ окажется значительно слабее, чем показанная на рис. 4, 5.

Различие формулы (6) и соотношения Нелея–Броуна для T_b в обычном случае ($T_b \approx KV/k \ln(t_i/\tau_0)$) отражает изменение характера ввода «внутреннего поля» для частицы при протяжке внешнего поля с постоянной скоростью за счет действия размагничивающего поля, которое хорошо иллюстрируется рис. 3.

Из уравнения (4) при $m = m_\infty$ можно найти выражение для магнитной восприимчивости $\chi_\infty = \partial m_\infty / \partial H_e|_{H_e \rightarrow 0}$ ансамбля частиц в состоянии равновесия при $H_e \rightarrow 0$, имеющее вид

$$\chi_\infty^{-1} = \left(\frac{\partial m_\infty}{\partial H_e} \Big|_{H_e \rightarrow 0} \right)^{-1} = N_z f_v + \frac{kT}{M_p^2 V}. \tag{7}$$

Для заблокированного неравновесного состояния магнитную восприимчивость можно определить в

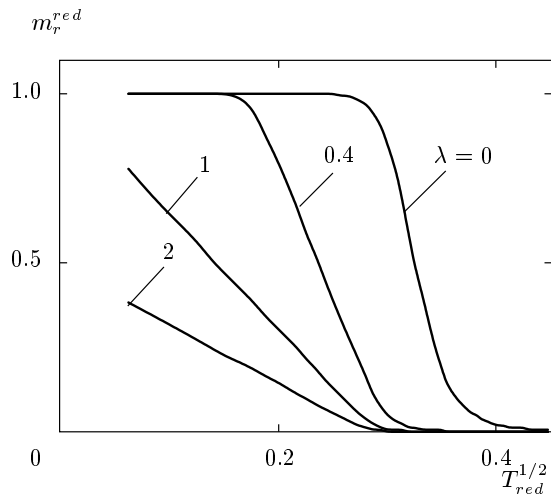


Рис. 6. Расчетные температурные зависимости нормированной остаточной намагниченности $m_r^{red} = m_r/f_v M_p$ для разных значений размагничивающего поля и при одной и той же скорости ввода магнитного поля

виде производной $\chi_{H_e=0} = \partial m / \partial H_e|_{H_e=0}$ (рассчитываемой, например, по верхней кривой петли гистерезиса). Из кривых, приведенных на рис. 2, следует, что при $T < T_b$ величина $\chi_{H_e=0}^{-1}(T)$ остается практически неизменной и равной $\chi_{H_e=0}^{-1}(T) \approx \chi_{\infty}^{-1}(T \rightarrow 0)$. Поэтому обратная восприимчивость $\chi_{H_e=0}^{-1}(T)$ гранулярного образца будет вести себя подобно восприимчивости сплошного многодоменного ферромагнетика, восприимчивость которого в $H_e \rightarrow 0$ также практически не зависит от температуры, за исключением области вблизи точки Кюри.

Если $N_z f_v M_p > H_A$, то остаточная намагниченность гранул в $H_e = 0$, $m_r(H_e = 0)$ прямо пропорциональна коэрцитивному полю

$$m_r(T) \approx \chi_{H_e=0}(T) H_c(T). \quad (8)$$

На рис. 6 приведены графики температурной зависимости $m_r(H_e = 0)$, полученные численным решением уравнений (1)–(4) при разных λ . Если $H_a > (H_m)_{max} (\lambda < 1)$, то имеется интервал температур, в котором $H_c(T) > (H_m)_{max}$, когда остаточная намагниченность равна намагниченности насыщения $m_r = f_v M_p$. Если $H_a < (H_m)_{max} (\lambda > 1)$, то при всех температурах остаточная намагниченность меньше намагниченности насыщения и для ее температурной зависимости выполняется соотношение, подобное соотношению Нееля–Броуна для коэрцитивной силы с T_b , определяемой формулой (5), а именно:

$$m_r(T) = m_r(T = 0) \left(1 - \sqrt{T/T_b(\lambda)} \right), \quad (9)$$

где $m_r(T = 0) = N_z f_v M_p^2 / H_a$ — остаточная намагниченность при $T = 0$.

5. НАМАГНИЧИВАНИЕ В РЕЖИМАХ FC И ZFC

Для анализа магнитного состояния суперпарамагнитных систем обычно сравнивают температурные зависимости намагниченности $m(T)$, получаемые в режимах FC и ZFC измерения. Зависимости FC для $m(T)$ получают в том или ином постоянном внешнем магнитном поле при охлаждении образца из равновесного при высокой температуре состояния. Зависимости ZFC для $m(T)$ также получают в постоянном внешнем магнитном поле при нагревании образца, предварительно охлажденного в нулевом поле из равновесного при высокой температуре состояния. Ход зависимости $m(T)$ в этих режимах намагничивания при $\lambda = 0$ детально анализировался в работе [38].

Рассмотрим зависимости $m(T)$ для этих режимов измерений с учетом действия размагничивающего поля, используя релаксационную модель (1)–(4). Как и раньше, будем полагать, что внешнее магнитное поле направлено вдоль оси анизотропии частиц.

Моделирование проводилось численно для режима постоянной скорости изменения температуры образца $\partial T / \partial t = v_T = \text{const}$. В расчетах использовалось (с целью сокращения необходимого машинного времени) короткое «время измерения», а именно, выбиралось $v_T = KV / 10^6 \tau_0 k$. Этого достаточно для качественного понимания влияния размагничивающего поля на характер FC- и ZFC-кривых намагничивания.

На рис. 7 приведены модельные зависимости для $m_{red}(T_{red})$, рассчитанные в описанных условиях для FC- и ZFC-режимов при разных значениях внешнего магнитного поля $h_e < h_a = 1$. Для высоких температур (справа от вертикальной прямой, нанесенной на рис. 7 точками) намагничивание равновесно и кривые намагниченности для обоих режимов совпадают. Казалось бы, эта температура должна соответствовать T_b . Однако величина T_b , получаемая в режимах FC и ZFC, зависит от величины магнитного поля, применяемого для получения $m(T)$ [38]. Как видно на рис. 7, от величины поля в данном случае зависит температура $T_1(H_e)$ начала намагничивания образца в ZFC-режиме. На рис. 7 также

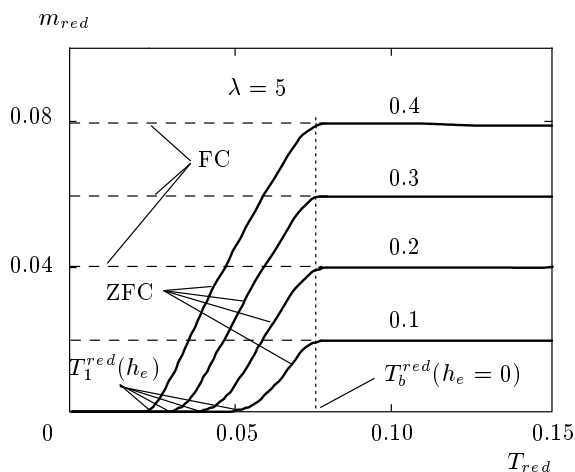


Рис. 7. Расчетные температурные зависимости намагниченности $m_{red}(T_{red})$, полученные для режимов FC (штриховые линии) и ZFC (сплошные линии) при разных значениях внешнего магнитного поля

видно, что величина $m_{red}(T_{red})$, полученная в режиме FC, практически не зависит от температуры.

Ход зависимостей $m_{red}(T_{red})$ при $\lambda \neq 0$ в режиме ZFC показывает, что чем больше величина внешнего магнитного поля h_e , тем более широким является интервал температур перехода от неравновесного состояния к равновесному. Эта особенность намагничивания в режиме ZFC связана с влиянием размагничивающего поля.

При низких температурах ($T \rightarrow 0$) магнитные моменты частиц полностью блокированы анизотропией, поэтому в режиме ZFC при $H_e < H_a$ средняя намагниченность образца остается равной нулю. При повышении температуры происходит вначале частичное, а затем и полное разблокирование направлений магнитных моментов частиц. Чем больше величина внешнего поля, тем при более низкой температуре начинается разблокирование магнитных моментов частиц. Однако полному разблокированию частиц препятствует размагничивающее поле, компенсирующее действие внешнего магнитного поля и замедляющее разблокирование остальных частиц. Чем больше частиц будет разблокировано, тем оно становится большим. В результате резкое разблокирование магнитных моментов всех частиц при определенной температуре, как это имеет место при $\lambda = 0$, не наблюдается, а переход к равновесию в режиме ZFC затягивается на определенный интервал температур, который, согласно использованной для расчета модели, разворачивается во времени.

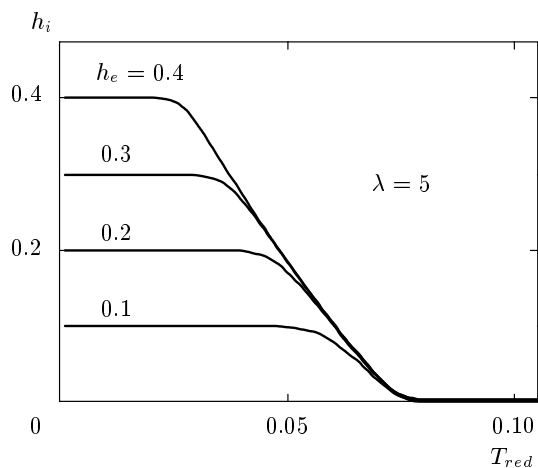


Рис. 8. Температурные зависимости внутреннего поля h_i от температуры в режиме ZFC

На рис. 8 показаны температурные зависимости внутреннего поля h_i на частице, построенные для ZFC-зависимостей, изображенных на рис. 7. При низких температурах, когда магнитные моменты частиц полностью блокированы и средняя намагниченность равна нулю, внутреннее поле равно внешнему, $h_i = h_e$. При повышении температуры, когда начинается разблокирование магнитных моментов частиц, средняя намагниченность становится отличной от нуля, формируется размагничивающее поле, компенсирующее внешнее поле, поэтому h_i уменьшается, становясь меньше h_e . Таким образом, размагничивающее поле приводит к тому, что перемагничивание частиц в режиме ZFC происходит во внутреннем поле, зависящем от температуры, разворачиваемой во времени. Полученные при разных h_e кривые для h_i в области близкой к состоянию равновесия почти совпадают (см. рис. 8). Поэтому состояние равновесия для $m_{red}(T_{red})$ реализуется практически при одной и той же температуре для разных h_e , которая должна быть равна предельной величине температуры блокировки, получаемой в режиме ZFC в нулевом внешнем поле $h_e \rightarrow 0$, когда действием размагничивающего поля можно пренебречь. На рис. 7 эта температура обозначена $T_b^{red}(h_e \rightarrow 0)$. Таким образом, в режиме ZFC частицы находятся во внутреннем магнитном поле, величина которого зависит от температуры, разворачиваемой во времени. Поэтому переход от полностью заблокированного к равновесному состоянию оказывается растянутым в интервале температур $T_1^{red}(h_e) < T_{red} < T_b^{red}(h_e \rightarrow 0)$.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе показано, что компонента размагничивающего поля в направлении легкой оси намагничивания ансамбля СВ-частиц с ориентированной анизотропией изменяет процесс их намагничивания. Из-за ее влияния возникают условия практически равномерного по времени опрокидывания магнитных моментов частиц при их перемагничивании с постоянной скоростью развертки поля. Это происходит в интервале внешних полей $\pm(H_m)_{max}$, на котором средняя намагниченность ансамбля линейно меняется в зависимости от внешнего поля. При этом температурная зависимость коэрцитивной силы продолжает удовлетворять соотношению Нееля–Броуна, с температурой блокировки слабо зависящей от величины размагничивающего поля $(H_m)_{max}$, достигаемого в состоянии насыщения намагниченности ансамбля. Данная слабая зависимость вызвана увеличением времени перемагничивания образцов с $(H_m)_{max} \neq 0$ при их перемагничивании с постоянной скоростью развертки поля. Последнее происходит из-за расширения полей размагничивания области внешних полей, в которых происходит перемагничивание. Показано, что из-за действия размагничивающего поля остаточная намагниченность при $(H_m)_{max} > H_a$ имеет температурную зависимость подобную таковой для коэрцитивного поля.

Показано также, что размагничивающее поле изменяет условия намагничивания в режиме ZFC. Внутреннее магнитное поле, в котором находятся частицы, при этом не является стационарным при постоянном внешнем поле, а изменяется с температурой, разворачиваемой во времени. В результате процесс разблокирования магнитных моментов происходит в интервале температур, ширина которого возрастает с увеличением внешнего поля.

Работа выполнена при финансовой поддержке совместного гранта ДФФДУ (F28/251) и РФФИ (№ 09-02-90460 Укр_ф_а), а также в рамках целевой программы НАН Украины (проект 1/10-11/19).

ЛИТЕРАТУРА

1. L. Neel, *Ann. Geophys.* **5**, 99 (1949).
2. C. P. Bean and J. D. Livingston, *J. Appl. Phys.* **30**, 120S (1959).
3. C. Stamm, F. Marty, A. Vaterlaus et al., *Science* **282**, 449 (1998).
4. C. P. Bean and I. S. Jacobs, *J. Appl. Phys.* **27**, 1448 (1956).
5. S. A. Majetich and Y. Jin, *Science* **284**, 470 (1999).
6. J. Q. Xiao, J. S. Jiang, and C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3749 (1992).
7. A. E. Berkowitz, J. R. Mitchell, M. J. Carey et al., *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3745 (1992).
8. J. Frenkel and J. Dorfman, *Nature* **126**, 274 (1930).
9. Е. И. Кондорский, *ДАН СССР* **80**, 197 (1951); **82**, 365 (1952).
10. Е. И. Кондорский, *Изв. АН СССР, сер. физ.* **16**, 398 (1952).
11. W. Wernsdorfer, *Adv. Chem. Phys.* **188**, 99 (2001).
12. D. Hinzke and U. Nowak, *J. Magn. Magn. Mat.* **221**, 365 (2000).
13. E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Phil. Trans. R. Soc. London, Ser. A* **240**, 599 (1948).
14. F. C. Fonseca, G. F. Goya, R. F. Jardim et al., *Phys. Rev. B* **66**, 104406 (2002).
15. J. Garcia-Otero, A. J. Garcia-Bastida, and J. Rivas, *J. Magn. Magn. Mat.* **189**, 377 (1998).
16. W. F. Brown, *J. Appl. Phys.* **30**, 130S (1959).
17. W. F. Brown, *J. Appl. Phys.* **34**, 1319 (1963).
18. A. A. Timopheev, S. M. Ryabchenko, V. M. Kalita et al., *J. Appl. Phys.* **105**, 083905 (2009).
19. G. N. Kakazei, A. F. Kravets, N. A. Lesnik et al., *J. Appl. Phys.* **85**, 5654 (1999).
20. Yu. G. Pogorelov, G. N. Kakazei, J. B. Sousa et al., *Phys. Rev. B* **60**, 12200 (1999).
21. Hong Bi, Shandong Li, Xiqun Jiang et al., *Phys. Lett. A* **307**, 69 (2003).
22. R. Skomski, G. C. Hadjipanayis, and D. J. Sellmyer, *IEEE Transactions on Magnetics* **43**, 2956 (2007).
23. C. Haginoya, S. Heike, M. Ishibashi et al., *J. Appl. Phys.* **85**, 8327 (1999).
24. C. P. Luo, S. H. Liou, L. Gao et al., *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2225 (2000).
25. T. Shima, K. Takahashi, Y. K. Takahashi et al., *Appl. Phys. Lett.* **81**, 1050 (2002).
26. Y. Shao, M. L. Yan, and D. J. Sellmyer, *J. Appl. Phys.* **93**, 8152 (2003).

27. M. L. Yan, X. Z. Li, L. Gao et al., *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3332 (2003).
28. J. Wan, Y. Huang, Y. Zhang et al., *J. Appl. Phys.* **97**, 10J121 (2005).
29. M. Albrecht, G. Hu, I. L. Gulr et al., *Nat. Mater.* **4**, 203 (2005).
30. Jian-Ping Wang, *Nat. Mater.* **4**, 191 (2005).
31. Е. З. Мейлихов, Р. М. Фарзетдинова, *ЖЭТФ* **121**, 875 (2002).
32. S. Bedanta and W. Kleemann, *J. Phys. D* **42**, 013001 (2009).
33. A. A. Timopheev, V. M. Kalita, S. M. Ryabchenko et al., *J. Appl. Phys.* **108**, 053902 (2010).
34. J. Escrig, D. Altbir, M. Jaafar et al., *Phys. Rev. B* **75**, 184429 (2007).
35. R. Skomski, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, R841 (2003).
36. В. Г. Барьяхтар, А. Н. Богданов, Д. А. Яблонский, *УФН* **156**, 47 (1988).
37. М. А. Чуев, *Письма в ЖЭТФ* **85**, 744 (2007).
38. А. А. Тимофеев, В. М. Калига, С. М. Рябченко, *ФНТ* **34**, 560 (2008).
39. M. A. Chuev and J. Hesse, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 506201 (2007).
40. P. Zhang, F. Zuo, F. K. Urban III et al., *J. Magn. Magn. Mat.* **225**, 337 (2001).