ФММ, 1996, **82**, вып. 5, с. 17–23.
УДК 538.245

Теория намагниченности двухфазных суперпарамагнитных частиц. II. Моделирование процессов намагничивания

Л. Л. Афремов, А. В. Панов

В работе построена модель малых химически неоднородных двухфазных ферримагнитных частиц. Разработана методика расчета полной и остаточной намагниченности, а также коэрцитивности суперпарамагнитных частиц.

В предыдущей работе [1] нами было показано, что межфазное магнитостатическое взаимодействие существенно влияет на критические поля перемагничивания, а, следовательно, и на метастабильность магнитных состояний зерен во внешнем поле $\boldsymbol{H}$. В ансамбле таких зерен, взаимодействие между ними должно привести к аналогичному результату, что, в конечном счете, может повлиять на процесс намагничивания.

Исследованию магнитостатического взаимодействия в системе однородных по химическому составу суперпарамагнитных зерен посвящено достаточно большое число работ (см., например, [2–6]). Для анализа магнитного взаимодействия в ансамбле химически неоднородных частиц воспользуемся методом случайного поля [3, 5].

1. Функция распределения по полям взаимодействия

Рассмотрим ансамбль из $N+1$ двухфазных частиц, хаотически рассеянных в немагнитной матрице, взаимодействующих между собой дипольно. Предположим, что рассматриваемая нами частица находится в начале системы координат. При известном распределении частиц по объему, когда в каждом элементарном объеме dV_i можно найти частицу с магнитным

моментом m_i, вероятность обнаружить в начале координат проекцию поля взаимодействия H' на выделенное внешним полем $\boldsymbol{H}$ направление $\boldsymbol{l}_0$, в интервале H', $H' + dH'$, равна:

$$\delta\left[H' - \sum_{i=1}^{N} \varphi_i(\boldsymbol{m}_i, \boldsymbol{r}_i)\right] dH',$$

где φ_i — проекция на $\boldsymbol{l}_0$ поля, создаваемого частицей с магнитным моментом $\boldsymbol{m}_i$, расположенной в точке $\boldsymbol{r}_i$. Тогда полная вероятность того, что поле лежит в интервале H', $H' + dH'$ определяется следующим образом:

$$W(H')dH' = \frac{1}{V^N} \int \delta\left(H' - \sum \varphi_i\right) \prod_{i=1}^{N} \tau(\boldsymbol{m}_i) d\boldsymbol{m}_i dV_i, \qquad (1)$$

где $\frac{dV_i}{V}\tau(\boldsymbol{m}_i)d\boldsymbol{m}_i$ — вероятность частицы с магнитным моментом $\boldsymbol{m}_i$, $\boldsymbol{m}_i + d\boldsymbol{m}_i$ попасть в элемент объема dV_i, $\tau(\boldsymbol{m}_i)$ — функция распределения частиц в образце по величине и направлению магнитного момента $\boldsymbol{m}$, которая в случае, когда магнитный момент зерна ориентирован по или против направления, выделяемого внешним полем, может быть выражена через заселенности магнитных состояний N_i (см. [1]):

$$\begin{aligned} \tau(\boldsymbol{m}_i)d\boldsymbol{m}_i = \int \{ & N_{1i}(H' + H)\delta(m_i - m_1)\delta(\gamma_i) + \\ & + N_{2i}(H' + H)\delta(m_i - m_2)\delta(\gamma_i) + N_{3i}(H' + H)\delta(m_i - m_1)\delta(\gamma_i - \pi) + \\ & + N_{4i}(H' + H)\delta(m_i - m_2)\delta(\gamma_i - \pi)\} dm_i \frac{d\gamma_i}{2\pi} W(H')dH', \end{aligned} \qquad (2)$$

где γ_i — угол между направлением $\boldsymbol{m}_i$ и $\boldsymbol{l}_0$, (N_{1i}, N_{2i}, N_{3i}, N_{4i}) — вектор состояний ансамбля двухфазных частиц,

$$m_1 = a^3 q[I_{s1}(1-\varepsilon) + I_{s2}\varepsilon], \quad m_2 = a^3 q[I_{s1}(1-\varepsilon) - I_{s2}\varepsilon] —$$

магнитные моменты соответствующих фаз. Характеристическая функция $A(\rho) = \int W(H)\exp(i\rho H)dH$, представляющая собой преобразование Фурье функции $W(H')$, имеет вид:

$$A(\rho) = \frac{1}{V^N} \int \ldots \int \exp\left(i\rho \sum_i \varphi_i\right) \prod_i \tau(\boldsymbol{m}_i) d\boldsymbol{m}_i dV_i. \qquad (3)$$

Используя условие нормировки $\int \tau(\boldsymbol{m}_i)d\boldsymbol{m}_i = 1$, а также полагая что при

$N \to \infty$, n — число частиц в единице объема, остается неизменным, (приближение малых концентраций), выражение (3) можно записать:

$$A(\rho) = \left\{1 - \frac{n}{N}\int (1 - \exp(i\rho\varphi))\tau(\boldsymbol{m})d\boldsymbol{m}dV\right\}^N \to e^{-c(\rho)}, \tag{4}$$

$$c(\rho) = n\int dV\int (1 - \exp(i\rho\varphi))\tau(\boldsymbol{m})d\boldsymbol{m}, \tag{5}$$

$$\varphi = -\frac{m\cos\gamma(1 - 3\cos^2 v)}{r^3}, \tag{6}$$

где v — угол между направлением $\boldsymbol{l}_0$ и радиусом-вектором частицы.

Интегрирование в выражении (5) приводит к результату

$$\begin{aligned} c(\rho) = n\int [&N_1 I_-(m_1,\rho) + N_2 I_-(m_2,\rho) + \\ &+ N_3 I_+(m_1,\rho) + N_4 I_+(m_2,\rho)]W(H')dH' \end{aligned} \tag{7}$$

где

$$I_\pm(m,\rho) = \int \left\{1 - \exp\left[\pm\frac{i\rho m}{r^3}(1 - 3\cos^2 v)\right]\right\}dV. \tag{8}$$

Учитывая, что $I_\pm(m,\rho) = bm|\rho| \pm iam\rho$, где $b \approx 5$, $a = \frac{4}{3}\pi - N + \frac{4}{15}\pi$, N — размагничивающий коэффициент, приходим к функции распределения, описываемой законом Коши:

$$W(H')dH' = \frac{dH'}{\pi B\left\{1 + \left[\frac{(H' + aI)}{B}\right]^2\right\}}, \tag{9}$$

где параметр распределения B и намагниченность I определяются с помощью системы уравнений

$$\begin{aligned} B = bc\int \{&(N_1 + N_3)[I_{s1}(1 - \varepsilon) + I_{s2}\varepsilon] + \\ &+ (N_2 + N_4)|I_{s1}(1 - \varepsilon) - I_{s2}\varepsilon|\}W(H')dH'; \end{aligned} \tag{10}$$

$$\begin{aligned} I = c\int \{&(N_1 - N_3)[I_{s1}(1 - \varepsilon) + I_{s2}\varepsilon] + \\ &+ (N_2 - N_4)[I_{s1}(1 - \varepsilon) - I_{s2}\varepsilon]\}W(H')dH', \end{aligned} \tag{11}$$

здесь $c = n a^3 q$ — объемная концентрация ферромагнетика.

Полученная система уравнений в совокупности с соотношениями, определяющими вектор заселенности $\boldsymbol{N}$ (см. формулы (17)–(18) работы [1]), по-

зволяет оценить параметр распределения Коши B и рассчитать величину намагниченности I.

2. Моделирование процесса намагничивания ансамбля невзаимодействующих частиц

При малых концентрациях частиц ($c \to 0$) функция распределения по полям взаимодействия $W(H') \to \delta(H')$, где $\delta(H')$ — дельта-функция Дирака. Интегрируя (11), приходим к выражению, определяющему намагниченность ансамбля одинаковых невзаимодействующих частиц:

$$I = -\left(I_{s1}(1-\varepsilon) + I_{s2}\varepsilon\right)\left(N_1 - N_3\right) + \left(I_{s1}(1-\varepsilon) - I_{s2}\varepsilon\right)\left(N_2 - N_4\right). \qquad (12)$$

Воспользуемся результатами экспериментов по определению спонтанной намагниченности $I_s = I_s(x)$ и кристаллографической анизотропии $k = k(x)$ ферритов $Co_xZn_{2-x}Ba_3Fe_{24}O_4$ от концентрации кобальта x [7], которые можно линейно интерполировать следующим образом:

$$I_s(x) = -20\,x + 385$$

$$k(x) = 8.3 - 13.3\,x$$

Будем полагать, что первая фаза обеднена, а вторая обогащена кобальтом ($x_1 < x_2$)

2.1. Время релаксации и вязкая намагниченность ансамбля невзаимодейсвующих частиц

Три собственных значения преобразованной матрицы переходов $\boldsymbol{W}$ (см. [1]), определенные из уравнения $\det\left|\boldsymbol{W} - \lambda \boldsymbol{E}\right| = 0$, где $\boldsymbol{E}$ — единичная матрица, можно интерпретировать как обратные времена релаксации τ_i. Причем наименьшее τ соответствует «времени жизни» максимально неустойчивого состояния, а наибольшее время релаксации τ_{max} — самого устойчивого состояния.

На рис. 1.*а* представлены результаты расчетов зависимости приведен-

ного времени релаксации устойчивого состояния τ_0 ($\tau_0 = \tau_{max} f_0$) ансамбля двухфазных частиц от концентрации атомов Co в первой фазе. Уменьшение химической неоднородности зерна (увеличение x_1) приводит к падению τ_0 (см. рис. 1.*а*). Такое поведение времени релаксации связано с уменьшением $I_s(x)$ и константы кристаллографической анизотропии $k(x)$. С ростом объема второй фазы ε τ_0 уменьшается (рис. 1.*а*), что связано с падением потенциальных барьеров E_{ik} (см. Приложение I, [1]) Поэтому вязкая намагниченность химически однородных частиц ($\varepsilon = 0$) нарастает быстрее, нежели неоднородных ($\varepsilon = 0.2$) (см. рис. 1.*б*).

2.2. Гистерезисные свойства и остаточная намагниченность ансамбля невзаимодействующих двухфазных зерен

Малые частицы, находясь в суперпарамагнитном состоянии, могут проявлять гистерезисные свойства лишь при условии, что время, прошедшее после выключения внешнего магнитного поля H, или время спада поля до $H = 0$, меньше времени релаксации. Естественно, что с увеличением размеров зерен подобная ситуация может быть реализована в интервале «разумных» (соизмеримых со временем измерений) промежутков времени.

На рис. 2. представлены коэрцитивная сила H_c и остаточная намагниченность насыщения I_{rs} , рассчитанные в результате моделирования петель гистерезиса (см. рис. 3.) с помощью соотношения (12). Как и следовало ожидать рост химической неоднородности зерна приводит к падению H_c и I_{rs}, что связано с уменьшением времени релаксации τ_0.

3. Влияние взаимодействия на остаточную намагниченность и коэрцитивность ансамбля химически неоднородных частиц

Предваряя анализ результатов моделирования процессов намагничивания ансамбля двухфазных взаимодействующих частиц, отметим что магнито-

статическое взаимодействие оказывает хаотизирующее влияние на распределение магнитных моментов частиц. Поэтому естественно ожидать уменьшение величины остаточной намагниченности в ансамбле взаимодействующих зерен по сравнению с ансамблем подобных зерен, в котором взаимодействие не учитывается. Иллюстрацией выше сказанному являются представленные на рис. 4. результаты расчетов остаточной намагниченности I_r, невзаимодействующих (кривая *1*) и взаимодействующих (кривая *2*) частиц.

Хаотизирующее влияние магнитостатического взаимодействия приводит к уменьшению коэрцитивности, причем наиболее значительно меняется H_c ансамбля химически неоднородных частиц (см. рис. 5.), время релаксации которого меньше τ_0 ансамбля химически однородных.

Предлагаемая модель позволяет исследовать процессы намагничивания и магнитные свойства системы малых химически неоднородных ферримагнитных частиц.

Литература

1. Афремов Л. Л., Панов А. В. Теория намагниченности двухфазных суперпарамагнитных частиц. I. Магнитные состояния // ФММ.- 1996.- т. - вып. - с.
2. Берков Д. В., Мешков С. В. К теории кривых перемагничивания разбавленных случайных магнетиков // ЖЭТФ.- 1988.- т. 94.- вып. 11.- с. 140-152.
3. Щербаков В. П. О функции распределения молекулярных полей в системах со случайно распределенными центрами взаимодействия // ФММ.- 1979.- т. 48.- вып. 6.- с. 1134-1137.
4. Кокорин В. В., Перекос А. Е., Чуистов К. В. Магнитостатическое взаимодействие между частицами ферромагнитной фазы в неферромагнитной матрице // ФММ.- 1977.- т. 43.- вып. 5.- с. 966-971.
5. Белоконь В. И., Семкин С. В. Метод случайного поля в модели Изинга разбавленного ферромагнетика // ЖЭТФ.- 1992.- т. 101.- вып. 10.- с. 1254-1258.
6. Альмиев А.С., Ралин А.Ю., Харитонский П.В. Функции распределения полей диполь-дипольного взаимодействия разбавленных магнетиков. // ФММ.- 1994.- том 78, вып. 1.-с. 28-34
7. Крупичка С. Физика ферритов и родственных им магнитных окислов: В 2-х т.: Пер. с нем./ Под ред. Пахомова А. С.- М.: Мир, т. 2.- 504 с.

Рисунки

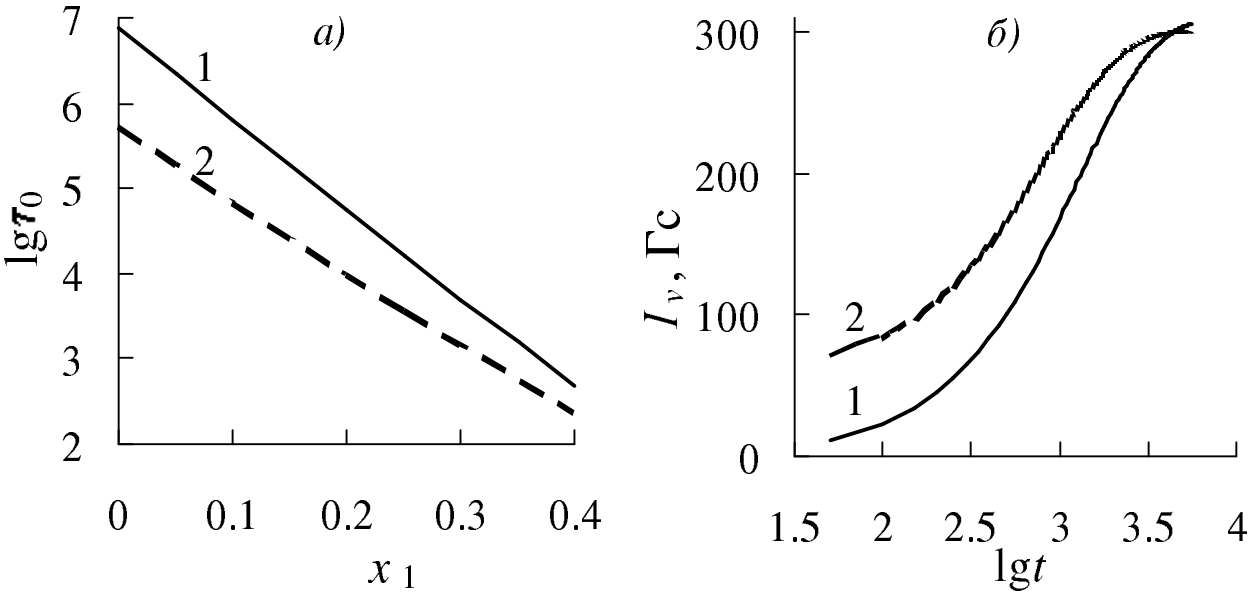

Рис. 1. Зависимость времени релаксации τ_0 (рис. 1.*а.*) и вязкой намагниченности (рис. 1.*б.*) от концентрации Co x_1 для ансамбля химически однородных, кривая 1, ($\varepsilon = 0$) и химически неоднородных, кривая 2, ($\varepsilon = 0.2$) частиц с $x_2 = 0.5$, $a = 10$ нм, $q = 1.5$.

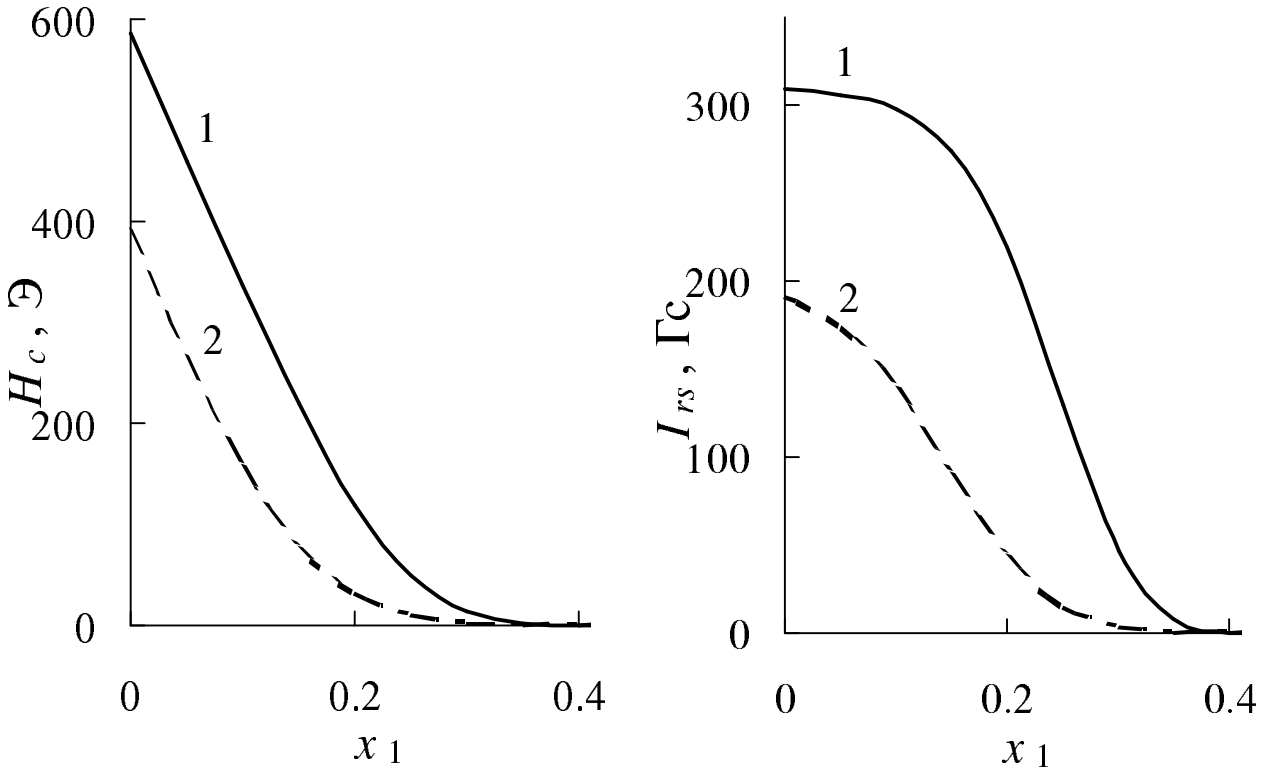

Рис. 2. Зависимость коэрцитивной силы H_c (*а*) и остаточной намагниченности насыщения I_{rs} (*б*) от концентрации Co x_1 (a = 10 нм, x_2 = 0.5 , q = 1.5), кривая *1* - ε = 0, кривая *2* - ε = 0.2.

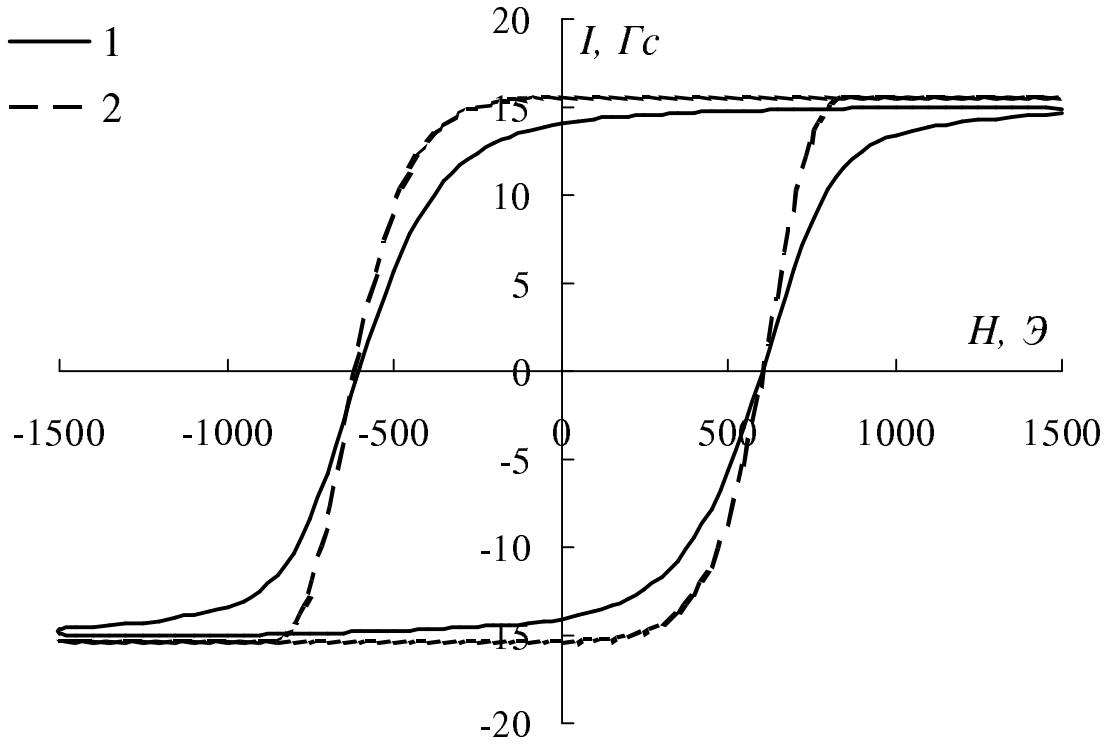

Рис. 3. Петли гистерезиса ансамбля химически однородных невзаимодействующих (кривая *1*) и взаимодействующих (кривая *2*) частиц с $q = 1.5$, $a = 10$ нм, $x_1 = 0$.

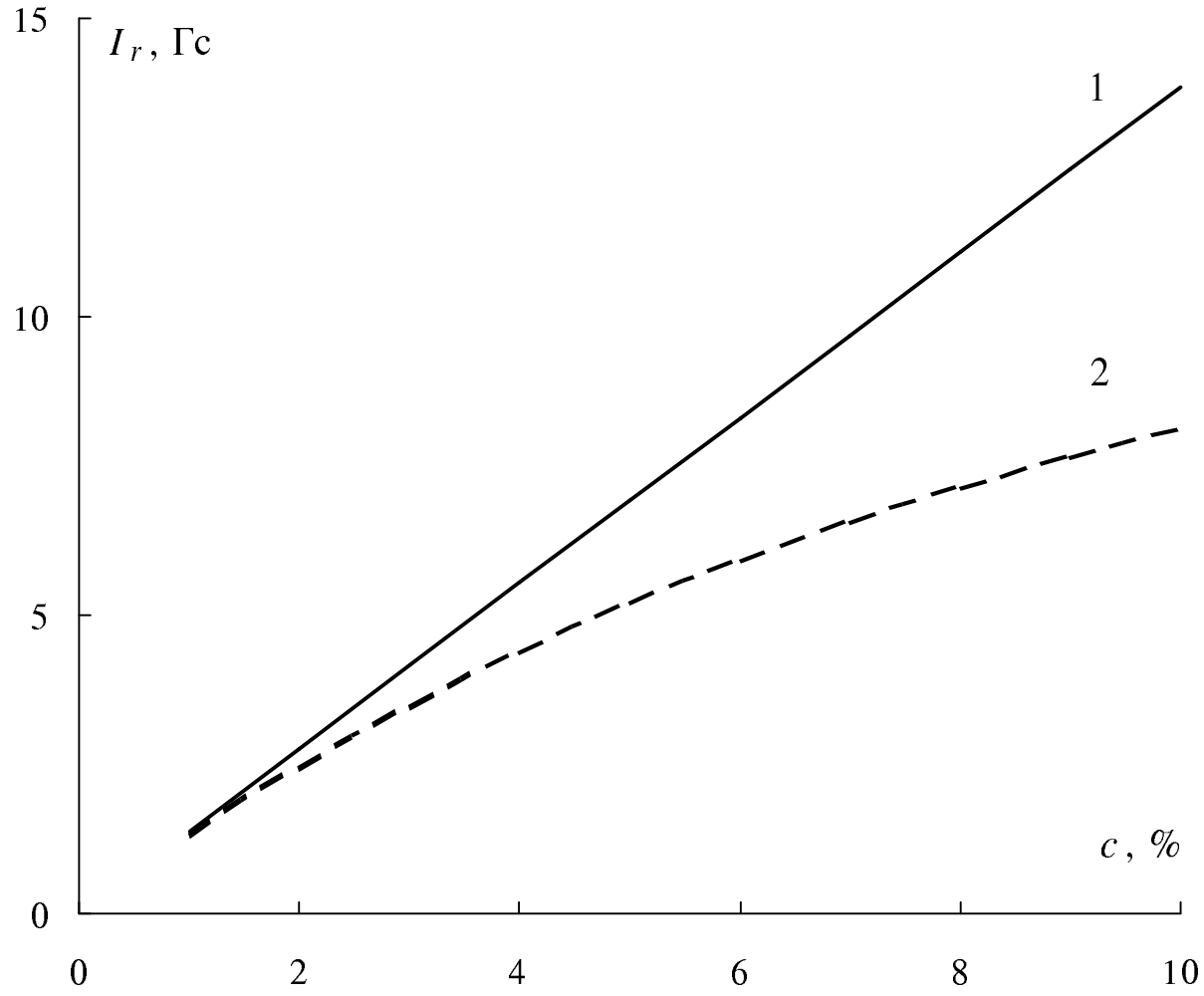

Рис. 4. Зависимость остаточной намагниченности I_r от объемной концентрации двухфазных частиц c ансамбля невзаимодействующих (кривая *1*) и взаимодействующих (кривая *2*) зерен, имеющих следующие параметры: $q = 1.5$, $a = 10$ нм, $x_1 = 0$, $x_2 = 0.5$, $H = 1000$ Э, $\varepsilon = 0.2$.

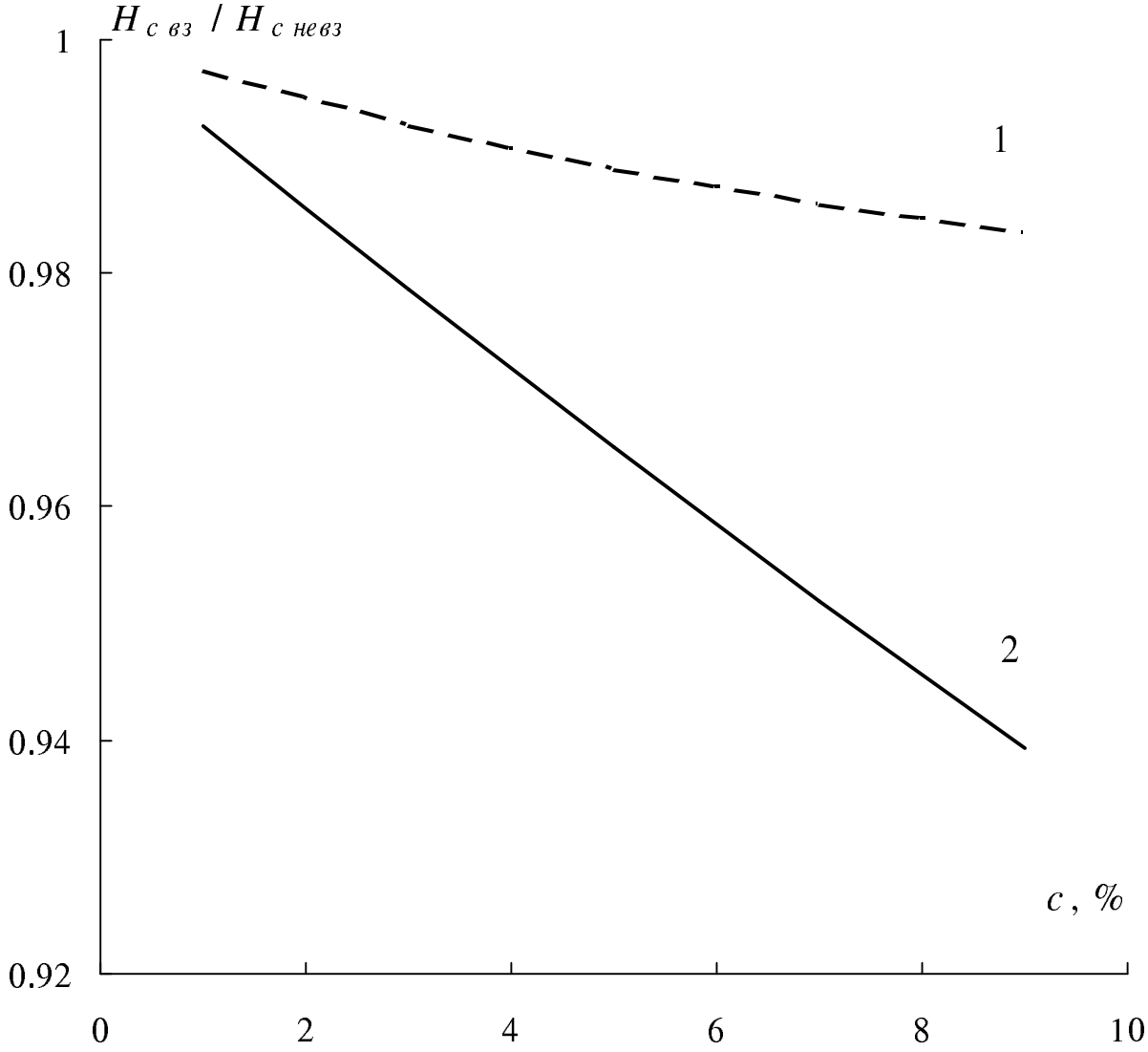

Рис. 5. Зависимости приведенных значений коэрцитивной силы $H_{c\ вз}/H_{c\ невз}$ от объемной концентрации c для химически однородных (кривая *1*) и неоднородных (кривая *2*, ε = 0.2) частиц (q = 1.5, a = 10 нм, x_1 = 0, x_2 = 0.5).