

PACS numbers: 75.30.Cr, 75.40.Mg, 75.50.Tt, 76.20.+q

## Корреляционные эффекты в релаксации намагниченности двумерных решеток наночастиц

С. И. Денисов, Т. В. Лютый

*Сумский государственный университет,  
механико-математический факультет,  
ул. Римского-Корсакова, 2,  
40007 Сумы, Украина*

Предложен эффективный метод численного моделирования магнитной релаксации в двумерных решетках одноосных ферромагнитных наночастиц с перпендикулярной анизотропией при наличии поля смещения. В рамках этого метода и в приближении среднего поля рассчитаны закон релаксации намагниченности и коэффициент магнитной вязкости таких решеток. Установлено, что корреляции направлений магнитных моментов наночастиц, обусловленные их диполь-дипольным взаимодействием, существенно влияют на процесс магнитной релаксации.

Запропоновано ефективний метод числового моделювання магнітної релаксації в двовимірних решітках одновісних ферромагнітних наночастинок з перпендикулярною анізотропією при наявності поля зміщення. В рамках цього методу та у наближенні середнього поля розраховано закон релаксації намагніченості і коефіцієнт магнітної в'язкості таких решіток. Встановлено, що кореляції напрямків магнітних моментів наночастинок, що зумовлені їх диполь-дипольною взаємодією, суттєво впливають на процес магнітної релаксації.

An effective method of the numerical simulation of magnetic relaxation is proposed for two-dimensional lattices of uniaxial ferromagnetic nanoparticles with perpendicular anisotropy in the presence of a bias field. Within this method and within the mean-field approximation, the 'law' of relaxation of magnetization and the coefficient of magnetic viscosity of such lattices are calculated. As revealed, the correlations of directions of the nanoparticle magnetic moments, which are conditioned by their dipolar interaction, essentially influence on the process of magnetic relaxation.

**Ключевые слова:** решетки наночастиц, диполь-дипольное взаимодействие, магнитная релаксация, корреляционные эффекты.

*(Получено 15 декабря 2003 г.)*

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из основных факторов, определяющих особенности магнитной релаксации в двумерных решетках одноосных ферромагнитных наночастиц с большой перпендикулярной анизотропией, является диполь-дипольное взаимодействие. Влияние этого взаимодействия на процесс релаксации намагниченности из состояния, когда все магнитные моменты наночастиц ориентированы вдоль одного направления их легких осей, теоретически изучено в приближениях среднего [1–3] и флуктуирующего [4] дипольного поля. В частности, показано, что среднее дипольное поле уменьшается со временем и, как следствие, темп релаксации замедляется, а действие флуктуаций дипольного поля на процесс релаксации сродни повышению температуры. Однако в рамках этих приближений не учитываются обусловленные диполь-дипольным взаимодействием корреляции направлений магнитных моментов наночастиц, которые в данных системах характеризуются тенденцией к антипараллельной ориентации любых двух магнитных моментов. Поскольку отличие между средним дипольным полем и локальными дипольными полями, действующими на наночастицы, увеличивается со временем, корреляционные эффекты должны играть наибольшую роль на промежуточном и заключительном этапах релаксации.

В работе [5] для изучения магнитной релаксации, происходящей с учетом корреляционных эффектов, развит новый метод ее численного моделирования, основанный на точном учете локальных дипольных полей и на вероятностной процедуре нахождения магнитного состояния решетки наночастиц в дискретные моменты времени. В отличие от других численных методов (см., например, работы [6–12]) данный метод позволяет рассчитать зависимость намагниченности от реального времени, а не от шагов Монте-Карло, как в [6–8], и не использует неоднозначную процедуру конвертирования шагов Монте-Карло в интервалы времени, как в [9–12]. Анализ законов релаксации, рассчитанных этим методом для разных решеток наночастиц, показал, что с увеличением интенсивности диполь-дипольного взаимодействия корреляционный вклад в закон релаксации также увеличивается, причем на малых временах он ускоряет релаксацию, а на больших — замедляет.

Развитый в [5] метод и полученные в его рамках результаты справедливы, если поле смещения, т. е. ориентированное перпендикулярно плоскости решетки внешнее магнитное поле, равно нулю. Между тем случай ненулевого поля смещения представляет не только теоретический, но и практический интерес, поскольку имеет непосредственное отношение к проблеме надежности хранения

информации в накопителях с перпендикулярной записью [13]. В связи с этим в данной работе метод [5] обобщен на случай ненулевого поля смещения, и с его помощью изучены особенности магнитной релаксации, обусловленные этим полем, структурой решетки и корреляциями направлений магнитных моментов наночастиц.

## 2. МОДЕЛЬ

Рассмотрим двумерный ансамбль одноосных ферромагнитных наночастиц радиуса  $r$ , размещенных в узлах квадратной или гексагональной решетки периода  $d$  ( $d > 2r$ ). Предположим, что легкие оси намагничивания наночастиц перпендикулярны плоскости решетки (плоскости  $xy$ ) и на магнитные моменты наночастиц  $\mathbf{m}_i(t)$  ( $|\mathbf{m}_i(t)| = m$ , индекс  $i$  нумерует частицы) действует эффективное поле магнитной анизотропии  $H_a \cos \theta_i(t) \mathbf{k}$  ( $H_a$  – поле анизотропии,  $\theta_i(t)$  – угол между  $\mathbf{m}_i(t)$  и единичным вектором  $\mathbf{k}$  оси  $z$ ), поле смещения  $H_0 \mathbf{k}$  и дипольное поле  $\mathbf{h}_i(t)$ . Если поле анизотропии велико по сравнению с  $|H_0|$  и  $|\mathbf{h}_i(t)|$ , тогда направления векторов  $\mathbf{m}_i(t)$ , задаваемые углами  $\theta_i(t) = 0$  и  $\theta_i(t) = \pi$ , являются устойчивыми и разделены высокими потенциальными барьерами. Однако при учете теплового магнитного поля  $\mathbf{n}_i(t)$ , представляющего действие термостата, магнитные моменты будут совершать случайные колебания в малых окрестностях положительного и отрицательного направлений оси  $z$ , изредка переориентируясь. Это означает, что между моментами переориентации выполняются приближенные равенства  $\mathbf{m}_i(t) = \sigma_i m \mathbf{k}$  ( $\sigma_i = +$  или  $-$ ), а числа  $N_+(t)$  и  $N_-(t)$  положительно и отрицательно ориентированных магнитных моментов являются хорошо определенными величинами. Следовательно, в этом случае число переориентируемых в данный момент времени магнитных моментов много меньше общего числа  $N$  наночастиц в решетке ( $N_+(t) + N_-(t) \approx N$ ), и мы можем определить приведенную намагниченность решетки как  $\rho(t) = 2 N_+(t)/N - 1$ . Для ее расчета при начальном условии  $\rho(0) = 1$ , отвечающем начальным условиям  $\mathbf{m}_i(0) = m \mathbf{k}$ , будем поступать следующим образом.

Сначала введем в рассмотрение вероятность  $w_{\sigma_i}(t; i)$  переориентации в единицу времени вектора  $\mathbf{m}_i(t)$  из состояния  $\sigma_i$  в состояние  $-\sigma_i$ . Тогда за время  $\tau$ , достаточно малое, чтобы можно было пренебречь вероятностями кратных переориентаций магнитных моментов, приращение  $\rho(t)$  записывается в виде [5]

$$\rho(t + \tau) - \rho(t) = -\frac{2\tau}{N} \sum_{i=1}^N \sigma_i w_{\sigma_i}(t; i). \quad (1)$$

Для вероятности  $w_{\sigma_i}(t; i)$  имеет место представление  $w_{\sigma_i}(t; i) = (1/2)t_m^{\sigma_i}(t; i)$ , где  $t_m^{\sigma_i}(t; i)$  — среднее время, которое необходимо маг-

нитному моменту  $\mathbf{m}_i(t)$ , чтобы достичь состояния с максимальным значением его энергии

$$W_i = -(1/2)H_a m [\cos^2 \theta_i(t) + 2B_i(t) \cos \theta_i(t)]. \quad (2)$$

Здесь  $B_i(t) = b_0 + b_i(t)$ ;  $b_0 = H_0/H_a$ ;  $b_i(t) = h_i(t)/H_a$ ;  $h_i(t) = -m \sum_{j \neq i} \sigma_j r_{ij}^{-3}$  —  $z$ -компонента локального дипольного поля  $\mathbf{h}_i(t)$ . Если выполняется условие  $|B_i(t)| < 1$ , обеспечивающее существование двух равновесных направлений вектора  $\mathbf{m}_i(t)$  с  $\theta_i(t) = 0$  и  $\theta_i(t) = \pi$ , тогда максимальное значение энергии  $W_i$  достигается при  $\theta_i(t) = \Omega_i(t)$ , где  $\Omega_i(t) = \arccos[-B_i(t)]$ .

Введем далее среднее время  $T_i = T_i^{\sigma_i}(\vartheta_i'; t)$ , которое необходимо углу  $\theta_i(t)$  ( $\theta_i(0) = \vartheta_i'$ ,  $\vartheta_i' \in (0, \Omega_i(t))$  при  $\sigma_i = +$  и  $\vartheta_i' \in (\Omega_i(t), \pi)$  при  $\sigma_i = -$ ), чтобы впервые достичь значения  $\Omega_i(t)$ . Время  $t_m^{\sigma_i}(t; i)$  выражается через  $T_i$  по формуле  $t_m^{\sigma_i}(t; i) = T_m^{\sigma_i}(\pi(1 - \sigma_i)/2; t)$ , а  $T_i$ , в свою очередь, определяется через условную плотность вероятности  $P(\vartheta_i, t | \vartheta_i', 0)$  того, что  $\theta_i(t) = \vartheta_i$  при  $\theta_i(0) = \vartheta_i'$ , как

$$T_i = \int_0^{\infty} du \int_{\Omega_i(t)(1 - \sigma_i)/2}^{\pi(1 - \sigma_i)/2 + \Omega_i(t)(1 + \sigma_i)/2} d\vartheta P(\vartheta, u | \vartheta_i', 0). \quad (3)$$

С помощью обратного уравнения Фоккера–Планка для  $P(\vartheta_i, t | \vartheta_i', t')$  ( $t' \leq t$ ) можно показать [14], что  $T_i$  удовлетворяет уравнению

$$\frac{d^2 T_i}{d\vartheta_i'^2} + [\cot \vartheta_i' - 2a(B_i(t) + \cos \vartheta_i') \sin \vartheta_i'] \frac{dT_i}{d\vartheta_i'} = -at_r, \quad (4)$$

где  $a = H_a m / 2k_B T$ ;  $k_B$  — постоянная Больцмана;  $T$  — абсолютная температура;  $t_r = 2/\lambda \gamma H_a$ ;  $\lambda$  — параметр затухания в стохастическом уравнении Ландау–Лифшица, описывающем динамику  $\mathbf{m}_i(t)$ ;  $\gamma$  — гиромангнитное отношение. Решая это уравнение с граничными условиями  $T_i|_{\vartheta_i' = \Omega_i(t)} = 0$  и  $dT_i/d\vartheta_i'|_{\vartheta_i' = \pi(1 - \sigma_i)/2} = 0$ , используя связь  $t_m^{\sigma_i}(t; i)$  с  $T_i$  и  $w_{\sigma_i}(t; i)$  с  $t_m^{\sigma_i}(t; i)$ , находим выражение для  $w_{\sigma_i}(t; i)$  в интересующем нас случае  $a[1 + \sigma_i B_i(t)]^2 \gg 1$ :

$$w_{\sigma_i}(t; i) = \frac{2}{t_r} \sqrt{\frac{a}{\pi}} [1 - B_i^2(t)] [1 + \sigma_i B_i(t)] e^{-a[1 + \sigma_i B_i(t)]^2}, \quad (5)$$

которое обобщает полученное в [5] на случай ненулевого поля сме-

щения.

Предположим теперь, что в момент времени  $t = t_n$  состояние решетки известно, т. е. известны  $\sigma_i$  для всех наночастиц. Тогда можно численно рассчитать дипольные поля  $h_i(t_n)$  и вероятности  $w_{\sigma_i}(t_n; i)$ , а из (1) найти приведенную намагниченность в момент времени  $t = t_{n+1}$ . Дополнив эту процедуру расчета  $\rho(t_{n+1})$  численной процедурой нахождения состояния решетки при  $t = t_{n+1}$  [5], мы получаем эффективный метод вычисления приведенной намагниченности в дискретные моменты времени, в котором влияние корреляций направлений магнитных моментов наночастиц на ход релаксации учитывается автоматически. Роль корреляционных эффектов можно проиллюстрировать, сравнив  $\rho(t)$  с законом релаксации  $\rho_{mf}(t)$ , найденным в приближении среднего поля. Поскольку в рамках этого приближения локальные дипольные поля заменяются на среднее, уравнение для  $\rho_{mf}(t)$  можно получить непосредственно из (1) при  $\tau \rightarrow 0$  и  $N \rightarrow \infty$ , заменив величины  $B_i(t)$  их средним значением  $B(t) = b_0 + b(t)$  ( $b(t) = -C\tau\rho_{mf}(t)/H_a d^3$ ,  $C \approx 9,034$  для квадратной решетки и  $C \approx 11,034$  для гексагональной):

$$\dot{\rho}_{mf}(t) = -\rho_{mf}(t)[w_+(t) + w_-(t)] - w_+(t) + w_-(t) \quad (6)$$

( $\rho_{mf}(0) = 1$ ). Отметим, что в приближении среднего поля вероятности  $w_+(t)$  и  $w_-(t)$  переориентации магнитных моментов, направленных соответственно вдоль и против оси  $z$ , зависят от  $t$  только посредством функции  $\rho_{mf}(t)$ .

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ

Используя изложенный выше алгоритм, мы изучили зависимости  $\rho(t)$  и  $\rho_{mf}(t)$  для ряда решеток наночастиц. Сформулируем полученные результаты, введя верхние индексы  $s$  и  $h$  для обозначения квадратной и гексагональной решетки соответственно. Если периоды этих решеток и наночастицы одинаковы, тогда на начальном этапе релаксации при любом допустимом поле смещения имеет место цепочка неравенств  $\rho_{mf}^s(t) > \rho^s(t) > \rho_{mf}^h(t) > \rho^h(t)$  ( $t > 0$ ). Физической причиной неравенств  $\rho_{mf}^s(t) > \rho^s(t)$  и  $\rho_{mf}^h(t) > \rho^h(t)$  является превышение для большинства наночастиц локальных дипольных полей, определяющих вероятности переориентации магнитных моментов, над средним дипольным полем. А поскольку большим локальным дипольным полям отвечает большая вероятность переориентации, начальный этап релаксации происходит быстрее, чем предсказывает теория среднего поля. Далее, благодаря большему числу ближайших соседей, среднее дипольное поле в гексагональной решетке на малых временах превышает локальные дипольные поля в квадратной решетке и, следовательно, должно выполняться условие

$$\rho^s(t) > \rho_{mf}^h(t).$$

Предельные значения, к которым стремятся функции  $\rho(t)$  и  $\rho_{mf}(t)$  в ходе релаксации, при  $H_0 \neq 0$  удовлетворяют условиям  $|\rho_{mf}^{s,h}(\infty)| > |\rho^{s,h}(\infty)|$ ,  $|\rho_{mf}^s(\infty)| > |\rho_{mf}^h(\infty)|$  и  $|\rho^h(\infty)| > |\rho^s(\infty)|$ , причем знаки  $\rho^{s,h}(\infty)$  и  $\rho_{mf}^{s,h}(\infty)$  совпадают со знаком  $H_0$  (если  $H_0 = 0$ , то  $\rho^{s,h}(\infty) = \rho_{mf}^{s,h}(\infty) = 0$ ). Первое из них обусловлено собственно корреляциями направлений магнитных моментов, которые в состояниях, близких к равновесному, приводят к отличию средних и локальных дипольных полей, второе — отличием средних полей в квадратной и гексагональной решетках (так как  $C^s < C^h$ ), а третье — отличием локальных полей. Установлено также, что на больших временах релаксация происходит медленнее, чем предсказывает теория среднего поля, т.е., другими словами, существует корреляционное замедление релаксации.

Отмеченные выше особенности магнитной релаксации на начальном и заключительном этапах определяют ее поведение на промежуточном этапе. Так, при  $H_0 < 0$  кривые  $\rho(t)$  и  $\rho_{mf}(t)$  должны иметь только одну точку пересечения в некоторый момент времени  $t = t_{in}$ , зависящий от  $H_0$ . При  $H_0 > 0$  функции  $\rho(t)$  и  $\rho_{mf}(t)$  пересекаются дважды в моменты времени  $t = t_{in1}$  и  $t = t_{in2}$ , с увеличением  $H_0$  временной интер-

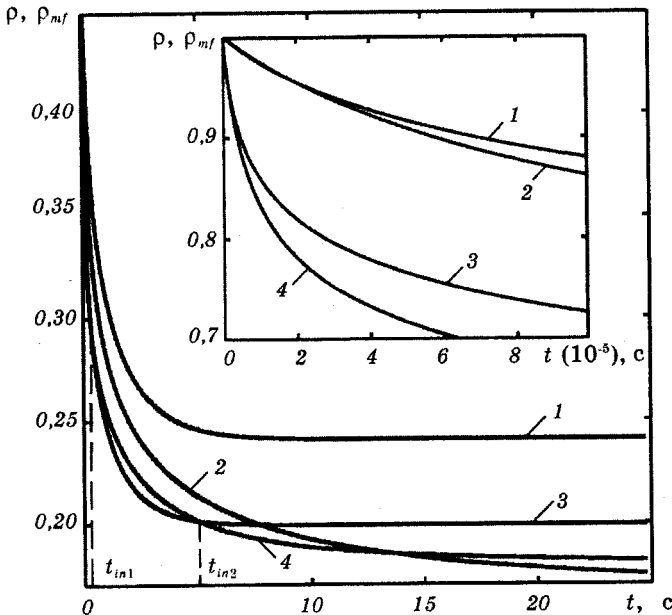


Рис. 1. Графики функций  $\rho_{mf}^s(t)$  (1),  $\rho^s(t)$  (2),  $\rho_{mf}^h(t)$  (3) и  $\rho^h(t)$  (4). На вставке — те же зависимости в меньшем временном масштабе.

вал ( $t_{in1}$ ,  $t_{in2}$ ) уменьшается ( $t_{in2} = \infty$  при  $H_0 = 0$ ) и, начиная с некоторого значения поля смещения, выполняется условие  $\rho_{mf}(t) > \rho(t)$  для всех  $t > 0$ . В качестве иллюстрации на рис. 1 показаны зависимости  $\rho^{s,h}(t)$  и  $\rho_{mf}^{s,h}(t)$ , рассчитанные для квадратной и гексагональной решетки Со наночастиц с параметрами  $H_a = 6400$  Э,  $m/V = 1400$  Гс ( $V$  — объем наночастицы),  $\lambda = 0,2$ ,  $r = 4$  нм,  $d = 3r$ ,  $T = 300$  К и  $H_0 = 500$  Э. В данном случае выполняется условие  $\rho_{mf}^s(t) > \rho^s(t)$  ( $t > 0$ ), а функции  $\rho^h(t)$  и  $\rho_{mf}^h(t)$  пересекаются при  $t_{in1} \approx 0,364$  с и  $t_{in2} \approx 5$  с.

Одной из важных характеристик закона релаксации является коэффициент магнитной вязкости [15], который определяется как  $S(t) = -d\rho(t)/d\ln(t)$ . Если на достаточно широком временном интервале выполняется условие  $S(t) \approx \text{const}$ , тогда релаксация происходит по логарифмическому закону, что характерно, например, для ансамблей наночастиц с логнормальным распределением их радиусов. Однако для рассмотренных здесь систем функция  $S(t)$  обнаруживает сильную зависимость от  $t$  (см. рис. 2), свидетельствующую о более сложном законе релаксации в таких системах.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе новым методом численного моделирования и методом среднего поля рассчитан закон магнитной релаксации в двумерных решетках одноосных ферромагнитных наночастиц с большой перпендикулярной анизотропией. Изучено влияние на него поля смещения, структуры решетки и корреляционных эффектов. Показано, что корреляции направлений магнитных моментов наночастиц ускоряют релаксацию на малых временах, замедляют на больших и в случае ненулевого поля смещения вносят заметный

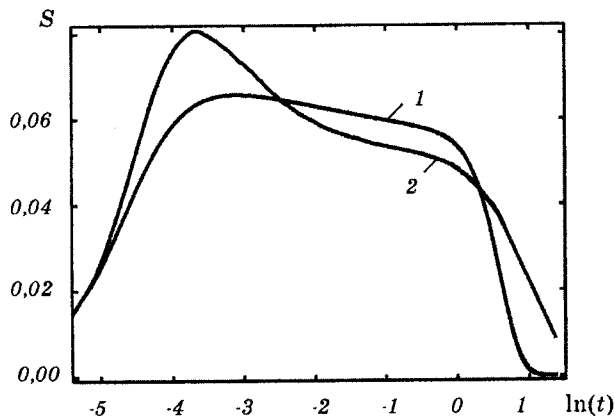


Рис. 2. Графики функций  $S_{mf}^s(t)$  (1) и  $S^s(t)$  (2) в логарифмическом масштабе.

вклад в величину равновесной намагниченности.

## ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. D. K. Lottis, R. M. White, and E. Dan Dahlberg, *Phys. Rev. Lett.*, **67**: 362 (1991).
2. S. I. Denisov and K. N. Trohidou, *Phys. Status Solidi A*, **189**: 265 (2002).
3. С. И. Денисов, Т. В. Лютый, В. Ф. Нефедченко, *Металлофиз. новейшие технол.*, **24**, № 1: 17 (2002).
4. S. I. Denisov and K. N. Trohidou, *Phys. Rev. B*, **64**: 184433 (2001).
5. S. I. Denisov, T. V. Lyutyu, and K. N. Trohidou, *Phys. Rev. B*, **67**: 014411 (2003).
6. L. C. Sampaio, M. P. de Albuquerque, and F. S. de Menezes, *Phys. Rev. B*, **54**: 6465 (1996).
7. L. C. Sampaio, R. Hyndman, F. S. de Menezes et al., *Phys. Rev. B*, **64**: 184440 (2001).
8. M. Ulrich, J. Garcia-Otero, J. Rivas et al., *Phys. Rev. B*, **67**: 024416 (2003).
9. Y. Kanai and S. H. Charap, *IEEE Trans. Magn.*, **27**: 4972 (1991).
10. U. Nowak, R. W. Chantrell, and E. C. Kennedy, *Phys. Rev. Lett.*, **84**: 163 (2000).
11. R. J. M. van de Veerdonk, X. W. Wu, R. W. Chantrell et al., *IEEE Trans. Magn.*, **38**: 1676 (2002).
12. O. Chubykalo, U. Nowak, R. Smirnov-Rueda et al., *Phys. Rev. B*, **67**: 064422 (2003).
13. A. Moser, K. Takano, D. T. Margulies et al., *J. Phys. D*, **35**: R157 (2002).
14. S. I. Denisov and A. N. Yunda, *Physica B*, **245**: 282 (1998).
15. R. H. Kodama, *J. Magn. Magn. Matter.*, **200**: 359 (1999).