

ЭЛЕКТРОННЫЕ СТРУКТУРА И СВОЙСТВА

PACS numbers: 75.50.Tt, 76.20.+q, 05.10.Gg

Магнитная релаксация в двухмерных ансамблях наночастиц: приближение среднего поля

С. И. Денисов, Т. В. Лютый, В. Ф. Нефедченко

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

В рамках приближения среднего поля изучен закон магнитной релаксации для двухмерных ансамблей сферических наночастиц, распределенных по узлам квадратной решетки. Показано, что магнитная релаксация в таких ансамблях характеризуется начальным и конечным временами релаксации и что их отличие обуславливает замедление релаксации. Выведена приближенная формула, описывающая временную эволюцию намагниченности.

В рамках приближения среднего поля вивчено закон магнітної релаксації для двовимірних ансамблів сферичних наночастинок, розподілених по вузлах квадратної ґратки. Показано, що магнітна релаксація в таких ансамблях характеризується початковим та кінцевим часами релаксації і що їх відмінність зумовлює уповільнення релаксації. Виведено наближену формулу, яка описує часову еволюцію намагніченості.

The law of magnetic relaxation for two-dimensional ensembles of uniaxial spherical nanoparticles distributed on the sites of a square lattice is studied within the mean-field approximation. As shown, magnetic relaxation in those ensembles is characterized by the initial and final relaxation times and their difference determines the deceleration of relaxation. The approximate formula describing the time-evolution of magnetization is derived.

Ключевые слова: ферромагнитные наночастицы, дипольное взаимодействие, тепловое возбуждение, магнитная релаксация, уравнение Фоккера—Планка.

(Получено 19 декабря 2001 г.)

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время большое внимание уделяется изучению свойств двухмерных ($2D$) ансамблей ферромагнитных наночастиц, что обусловлено как технологическими достижениями в получении таких ансамблей, так и их интересными физическими свойствами, обусловленными, в частности, дипольным взаимодействием наночастиц [1—4]. Среди $2D$ -ансамблей важный класс образуют ансамбли одноосных наночастиц, легкие оси намагничивания которых перпендикулярны плоскости, в которой расположены наночастицы. Данные ансамбли весьма перспективны с точки зрения применений в запоминающих устройствах и, благодаря вырождению распределения направлений легких осей, удобны для изучения влияния дипольного взаимодействия. Так, в [5, 6] на примере тонких пленок с наночастицами CoCr и CoCrPt экспериментально показано, что дипольное взаимодействие существенно изменяет форму кривых намагничивания таких ансамблей. Роль дипольного взаимодействия в термоиндуцированной релаксации намагниченности из начального состояния (когда все магнитные моменты наночастиц ориентированы вдоль определенного направления легкой оси) в размагниченное основное состояние изучена в рамках упрощенной версии приближения среднего поля [7]. Авторы численно показали, что благодаря дипольному взаимодействию процесс магнитной релаксации замедляется, а закон релаксации аппроксимировали медленно убывающей (по сравнению с экспоненциальной) функцией. Однако, как отмечено в самой работе [7], эта функциональная зависимость не имеет места на всем временном интервале и вопрос о законе релаксации намагниченности в таких ансамблях остается открытым. Цель данной работы — нахождение этого закона в приближении среднего поля.

ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Рассмотрим $2D$ -ансамбль одноосных сферических наночастиц радиуса r , которые распределены с вероятностью p по узлам $\mathbf{s} = d(n\mathbf{i} + k\mathbf{j})$ (n и k — целые числа, \mathbf{i} и \mathbf{j} — единичные векторы вдоль осей x и y соответственно) квадратной решетки периода d . Будем предполагать, что легкие оси намагничивания наночастиц параллельны оси z и в начальный момент времени выполняются условия $\mathbf{m}_i(0) = m\mathbf{k}$, где $\mathbf{m}_i(t)$ — магнитный момент i -й частицы, $m = |\mathbf{m}_i(t)|$ и \mathbf{k} — единичный вектор вдоль оси z . В приближении среднего поля каждую частицу можно рассматривать как изолированную и описывать динамику ее магнитного момента $\mathbf{m} = \mathbf{m}(t)$ стохастическим уравнением Ландау—Лифшица

$$\dot{\mathbf{m}} = -\gamma \mathbf{m} \times (\mathbf{H} + \mathbf{n}) - (\lambda \gamma / m) \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}). \quad (1)$$

Здесь $\gamma (> 0)$ — гиромангнитное отношение, $\lambda (\ll 1)$ — параметр затухания, $\mathbf{H} = H_a \cos \theta(t) \mathbf{k} + \mathbf{H}_d(t)$, H_a — поле анизотропии, $\theta(t)$ — полярный угол \mathbf{m} , $\mathbf{H}_d(t)$ — среднее дипольное поле, действующее на \mathbf{m} , и $\mathbf{n} = \mathbf{n}(t)$ — случайное магнитное поле, представляющее действие термостата. Согласно [8] $\mathbf{n}(t)$ можно аппроксимировать белым шумом, имеющим нулевое среднее значение и корреляционную функцию $\overline{n_\alpha(t_1)n_\beta(t_1+t)} = 2\Delta\delta_{\alpha\beta}\delta(t)$, где черта обозначает усреднение по реализациям шума $\mathbf{n}(t)$, $n_\alpha(t)$ ($\alpha = x, y, z$) — компоненты $\mathbf{n}(t)$, $\delta_{\alpha\beta}$ — символ Кронекера, $\delta(t)$ — дельта-функция, $\Delta = \lambda k_B T / (\gamma m)$ — интенсивность шума, k_B — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура.

Среднее дипольное поле определяется как $\mathbf{H}_d(t) = \langle \overline{\mathbf{h}(t)} \rangle$, где $\mathbf{h}(t)$ — локальное дипольное поле, действующее на произвольно выбранную частицу, а угловые скобки обозначают усреднение по возможным размещениям других частиц. Используя точное выражение для $\mathbf{h}(t)$, начальные условия для $\mathbf{m}_i(t)$ и условие равновероятности возможных размещений частиц в решетке, нетрудно убедиться, что $\mathbf{H}_d(t) = H_d(t)\mathbf{k}$ и $H_d(t) = -\langle \sum_{i \neq 0} \overline{m_{iz}(t)} |s_i|^{-3} \rangle$ (мы предполагаем, что выбранная частица находится в начале координат). Вычисление $H_d(t)$ методом [9] приводит к формуле

$$H_d(t) = -8Spd^{-3} \overline{m_z(t)} \quad (2)$$

($S = (d/2)^3 \sum_{s \neq 0} |s|^{-3} \approx 1,129$), которая показывает, что среднее дипольное поле направлено против начальной намагниченности.

Пусть $P = P(\theta, \varphi, t)$ обозначает плотность вероятности того, что $\theta(t) = \theta$ и $\varphi(t) = \varphi$ ($\varphi(t)$ — азимутальный угол вектора \mathbf{m}). Поскольку в рамках приближения среднего поля дипольное взаимодействие наночастиц учитывается только посредством среднего дипольного поля, уравнение для P должно иметь точно такой же вид, как в случае невзаимодействующих частиц [8], находящихся во внешнем магнитном поле $\mathbf{H}_d(t)$

$$\frac{\partial P}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\frac{\lambda \gamma}{m} \frac{dW}{d\theta} - \gamma^2 \Delta \operatorname{ctg} \theta \right) P + \gamma^2 \Delta \frac{\partial^2 P}{\partial \theta^2} - \frac{\gamma}{m \sin \theta} \frac{dW}{d\theta} \frac{\partial P}{\partial \varphi} + \gamma^2 \Delta \frac{\partial^2 P}{\partial \varphi^2}, \quad (3)$$

где $W = -(1/2)H_a m (\cos^2 \theta + 2b(t)\cos \theta)$ — магнитная энергия наночастицы в приближении среднего поля, и $b(t) = H_d(t)/H_a$. Отметим, однако, что для невзаимодействующих частиц уравнение (3) линейное по P , тогда как в случае взаимодействующих частиц оно нелинейное, поскольку $b(t)$ определяется самой функцией распределения P .

Принимая во внимание, что как магнитная энергия W , так и начальная функция распределения $P(\theta, \varphi, 0) = \delta(\theta)/(2\pi)$ не зависят

от азимутального угла φ , мы можем воспользоваться представлением $P(\theta, \varphi, t) = G(\theta, t)/(2\pi)$, где функция распределения $G(\theta, t)$ удовлетворяет уравнению

$$\frac{\partial G(\theta, t)}{\partial t} = \frac{1}{t, a} \frac{\partial}{\partial \theta} \left\{ [a(\sin 2\theta + 2b(t)\sin\theta) - \text{ctg}\theta] G(\theta, t) + \frac{\partial G(\theta, t)}{\partial \theta} \right\} \quad (4)$$

($t_r = 2/(\lambda\gamma H_a)$, $a = H_a m/(2k_B T)$). Определив функцию распределения

$$G_{qe}(\theta, t) = C(t)\sin\theta e^{a[\cos^2\theta + 2b(t)\cos\theta]} \quad (5)$$

($C(t)$ — нормировочный множитель), которая при $t > t_r$ описывает квазиравновесное распределение m и удовлетворяет уравнению

$$\frac{\partial G_{qe}(\theta, t)}{\partial \theta} + [a(\sin 2\theta + 2b(t)\sin\theta) - \text{ctg}\theta] G_{qe}(\theta, t) = 0, \quad (6)$$

мы можем переписать уравнение (4) в следующем виде:

$$\frac{\partial G(\theta, t)}{\partial t} = \frac{1}{t, a} \frac{\partial}{\partial \theta} G_{qe}(\theta, t) \frac{\partial}{\partial \theta} \frac{G(\theta, t)}{G_{qe}(\theta, t)}. \quad (7)$$

Далее мы рассмотрим случай, когда высота потенциального барьера $\delta U = (H_a m/2)[1 + b(t)]^2$ между равновесными направлениями магнитного момента существенно превышает тепловую энергию $k_B T$, т. е. когда $a[1 + b(0)]^2 \gg 1$ и $|b(0)| < 1$. При этих условиях уравнение (7) можно решить методом Крамера [10], согласно которому решение (7) при $t > t_r$ ищется в виде

$$G(\theta, t) = G_{qe}(\theta, t) \begin{cases} p_+(t)/n_+(t), & 0 \leq \theta \leq \theta_0(t), \\ p_-(t)/n_-(t), & \theta_0(t) < \theta \leq \pi. \end{cases} \quad (8)$$

Здесь

$$p_+(t) = \int_0^{\theta_0(t)} G(\theta, t) d\theta, \quad n_+(t) = \int_0^{\theta_0(t)} G_{qe}(\theta, t) d\theta, \quad (9)$$

$p_-(t) = 1 - p_+(t)$, $n_-(t) = 1 - n_+(t)$ и $\theta_0(t) = \arccos(-b(t))$ — угол, при котором магнитная энергия наночастицы имеет наибольшее значение. В рассматриваемом случае магнитные моменты наночастиц флуктуируют в малых окрестностях положительного и отрицательного направлений оси z , лишь изредка переориентируясь. В соответствии с этим из определения

$$\overline{m_z(t)} = m \int_0^\pi \cos\theta G(\theta, t) d\theta$$

получаем $\overline{m_z(t)} = m[p_+(t) - p_-(t)]$. Используя (2), (7), (8) и асимпто-

тические формулы

$$n_{\sigma}(t) = \frac{e^{a[1 + 2\sigma b(t)]}}{2a[1 + \sigma b(t)]}, \quad (10)$$

$$\int_0^{\theta_0(t)} \frac{1}{G_{qe}(\theta, t)} \frac{\partial}{\partial t} \left(\int_0^{\theta} G(\vartheta, t) d\vartheta \right) d\theta = \dot{p}_+(t) \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{a}} \frac{e^{ab^2(t)}}{1 - b^2(t)}, \quad (11)$$

справедливые при $a[1 + b(0)]^2 \rightarrow \infty$, для функции $\mu(t) = p_+(t) - p_-(t)$, которая определяет закон магнитной релаксации, получаем уравнение

$$\dot{\mu}(t) = -\mu(t) \left(\frac{1}{t_s^+(t)} + \frac{1}{t_s^-(t)} \right) - \frac{1}{t_s^+(t)} + \frac{1}{t_s^-(t)}, \quad (12)$$

где

$$t_s^{\sigma}(t) = \frac{t_r \sqrt{\pi/a}}{2[1 - b^2(t)][1 + \sigma b(t)]} \exp(a[1 + \sigma b(t)]^2) \quad (13)$$

— среднее время пребывания магнитного момента в положительном ($\sigma = +$) и отрицательном ($\sigma = -$) направлении оси z . Согласно (13) правая часть (12) зависит от времени только посредством $\mu(t)$. Следовательно, уравнение (12) — это уравнение с разделяющимися переменными вида $\dot{\mu}(t) = -F(\mu(t))$, решение которого, удовлетворяющее начальному условию $\mu(0) = 1$, определяется из уравнения

$$\int_{\mu(t)}^1 \frac{dx}{F(x)} = t. \quad (14)$$

Таким образом, в приближении среднего поля процесс релаксации намагниченности в $2D$ -ансамблях одноосных наночастиц, имеющих большую перпендикулярную анизотропию, описывается решением уравнения (14).

АНАЛИЗ ЗАКОНА РЕЛАКСАЦИИ

Поскольку $F(x)$ является сложной функцией x , точное решение уравнения (14) можно найти лишь в случае невзаимодействующих наночастиц, отвечающем условию $p = 0$. Согласно (13) в этом случае $t_s^+(t) = t_s^-(t) \equiv 2\tau$ ($\tau = t_r \sqrt{\pi/16a} \exp a$), поэтому $F(x) = x/\tau$ и после интегрирования в (14) получаем $\mu(t) = \exp(-t/\tau)$. Следовательно, в соответствии с результатами [8] магнитная релаксация в ансамблях невзаимодействующих наночастиц характеризуется единственным временем релаксации τ .

Если дипольным взаимодействием частиц пренебречь нельзя, тогда аналитическое решение уравнения (14) можно найти при $t \ll t_s^o(0)$ и $t \gg t_s^o(\infty)$. В первом случае выполняется условие $\mu(t) \approx 1$, поэтому $F(x)$ мы можем заменить на $F(1) = 1/\tau_0$ ($\tau_0 = t_s^+(0)/2$) и записать решение (14) в виде $\mu(t) = 1 - t/\tau_0$, где

$$\tau_0 = t_r \sqrt{\frac{\pi}{a}} \frac{e^{a(1-\xi)^2}}{4(1-\xi^2)(1-\xi)} \quad (15)$$

— начальное время релаксации намагниченности, а $\xi = -b(0) = 8Sp_m/(H_a d^3)$ — параметр, характеризующий интенсивность дипольного взаимодействия в системе. Во втором случае $\mu(t) \approx 0$ и, значит, основной вклад в величину интеграла (14) дает малая окрестность нижнего предела интегрирования. Поскольку в этой окрестности функцию $F(x)$ мы можем заменить на $x F'(0)$ ($F(0) = 0$, $F'(0) = dF(x)/dx|_{x=0}$), из (14) получаем $\mu(t) \sim \exp(-t/\tau_\infty)$, где

$$\tau_\infty = \frac{1}{F'(0)} = t_r \frac{e^a}{4[1 + (2a-1)\xi]} \quad (16)$$

— конечное время релаксации намагниченности.

Полученные выше асимптотические формулы позволяют аппроксимировать закон релаксации $\mu(t)$ функцией

$$\mu(t) = \frac{\tau_0/\tau_\infty}{e^{t/\tau_\infty} + \tau_0/\tau_\infty - 1}, \quad (17)$$

которая при $t \rightarrow 0$ и $t \rightarrow \infty$ имеет такие же асимптотики, как точное решение уравнения (14). Согласно (17) магнитную релаксацию в $2D$ -ансамблях взаимодействующих наночастиц приближенно можно охарактеризовать двумя временами релаксации — начальным τ_0 и конечным τ_∞ . При $\xi \neq 0$ времена релаксации подчинены условиям $\tau_0 < \tau_\infty < \tau$ ($\tau_0 = \tau_\infty = \tau$, если $\xi = 0$), причем в рассматриваемом случае, когда $a(1-\xi)^2 \gg 1$, легко реализуется также сильное неравенство $\tau_0 \ll \tau_\infty$. Следовательно, дипольное взаимодействие, учитываемое посредством среднего дипольного поля, увеличивает скорость релаксации намагниченности по сравнению со случаем невзаимодействующих наночастиц и приводит к замедлению процесса релаксации. Физической причиной последнего является рост потенциального барьера δU со временем. Отметим также, что флуктуации дипольного поля вносят дополнительный вклад в увеличение скорости релаксации [11].

В качестве иллюстрации полученных результатов на рис. 1 для ансамбля наночастиц Co показана зависимость закона релаксации намагниченности от вероятности p распределения частиц по узлам решетки. Увеличение скорости релаксации (т. е. уменьшение времени

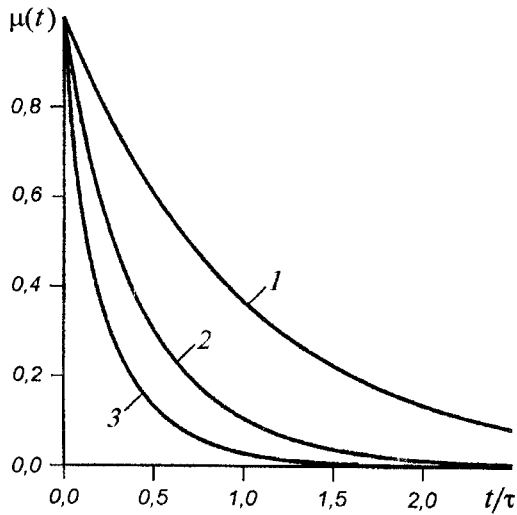


Рис. 1. Закон релаксации намагниченности ансамбля наночастиц Co , имеющего параметры $H_a = 6400$ Э, $m/V = 1400$ Гс ($V = 4\pi r^3/3$), $\lambda = 0,2$, $d = 25$ нм, $r = 4$ нм и $T = 300$ К, при $p = 0$ (случай невзаимодействующих наночастиц, кривая 1), $p = 0,5$ (2) и $p = 1$ (3).

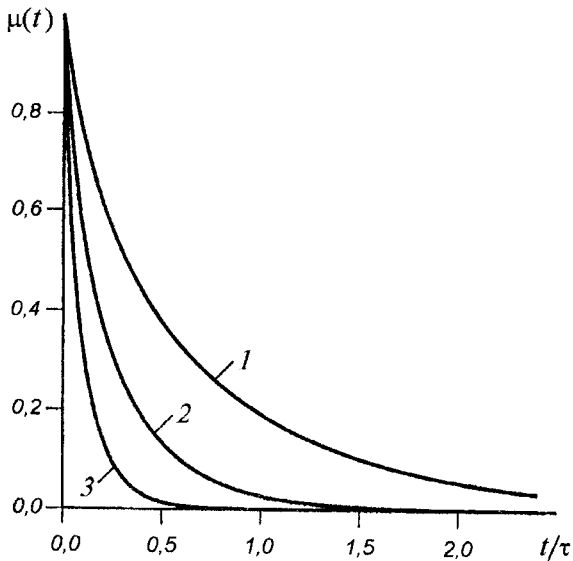


Рис. 2. Закон релаксации намагниченности для того же ансамбля наночастиц Co при $p = 1$ и $T = 290$ К (1), $T = 300$ К (2), $T = 310$ К (3).

релаксации) с увеличением p вызывается понижением высоты потенциального барьера δU , которое обусловлено возрастанием среднего дипольного поля. Зависимость закона релаксации от температуры для этого же ансамбля наночастиц S_0 в случае $p = 1$ иллюстрирует рис. 2. Тот факт, что незначительные изменения температуры приводят к большим изменениям скорости релаксации, объясняется экспоненциальной зависимостью времен $t_s^+(t)$ и $t_s^-(t)$ от температуры.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в рамках приближения среднего поля выведено уравнение (14), описывающее магнитную релаксацию в $2D$ -ансамблях одноосных наночастиц, высота потенциального барьера между равновесными направлениями магнитных моментов которых существенно превышает тепловую энергию. Показано, что под влиянием среднего дипольного поля релаксация происходит быстрее, чем в случае невзаимодействующих частиц, а сам процесс релаксации замедляется со временем. Время релаксации на начальном этапе релаксации меньше, чем на заключительном, что и обуславливает ее замедление.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. E. Gu, S. Hope, M. Tselepi, and J. A. C. Bland, *Phys. Rev. B*, **60**: 4092 (1999).
2. R. P. Cowburn, A. O. Adeyeye, and M. E. Welland, *New J. Phys.*, **1**: 16.1 (1999).
3. V. Russier, C. Petit, J. Legrand, and M. P. Pileni, *Phys. Rev. B*, **62**: 3910 (2000).
4. A. A. Fraerman, S. A. Gusev, I. M. Nefedov et al., *J. Phys.: Condens. Matter*, **13**: 683 (2001).
5. G. Bottoni, D. Candolfo, and A. Cecchetti, *J. Appl. Phys.*, **85**: 4729 (1999).
6. C. Hagino, S. Heike, M. Ishibashi et al., *J. Appl. Phys.*, **85**: 8327 (1999).
7. D. K. Lottis, R. M. White, and E. Dan Dahlberg, *Phys. Rev. Lett.*, **67**: 362 (1991).
8. W. F. Brown, Jr., *Phys. Rev.*, **130**: 1677 (1963).
9. С. И. Денисов, *ФТТ*, **41**: 1822 (1999).
10. К. В. Гардинер, *Стохастические методы в естественных науках* (Москва: Мир: 1986).
11. S. I. Denisov and K. N. Trohidou, *Phys. Rev. B*, **64**: 184433 (2001).