Письма в ЖЭТФ, том 87, вып. 12, с. 807 – 809

Ответ М. А. Чуева

М. А. Чуев[1)]

Физико-технологический институт РАН, 117218 Москва, Россия

Поступила в редакцию 20 мая 2008 г.

Дан ответ на критические замечания по поводу результатов моей статьи, опубликованной в Письмах в ЖЭТФ [**85**, 744 (2007)]. В рамках ответа предложена более точная модель магнитной динамики для расчета кривых намагничивания ансамбля однодоменных частиц, причем предварительные расчеты подтверждают наличие асимптотического поведения в слабых магнитных полях, отличного от ланжевеновского предела.

PACS: 61.18.Fs, 61.46.+w, 71.70.Gm, 75.60.Jp, 76.80.+y

Основная цель статьи [1] заключалась в том, чтобы разработать или, по крайней мере, начать разрабатывать феноменологическую модель магнитной динамики, приемлемую для численного анализа большого количества экспериментальных данных по температурной зависимости намагниченности разнообразных систем частиц или кластеров малых размеров, который в настоящее время ограничивается лишь качественными оценками, на основании которых пытаются делать физические выводы. В качестве первого приближения для решения этой проблемы и была предложена обобщенная модель Стонера-Вольфарта (СВ), которая является простейшей для данной задачи. Помимо качественного описания формы экспериментальных зависимостей, в рамках этой модели был получен действительно нетривиальный результат, а именно, асимптотическое поведение намагниченности и восприимчивости в пределе высоких температур, качественно отличное от классического ланжевеновского предела для идеальных суперпарамагнитных частиц (выражения (19), (20) и рис.4 в [1]).

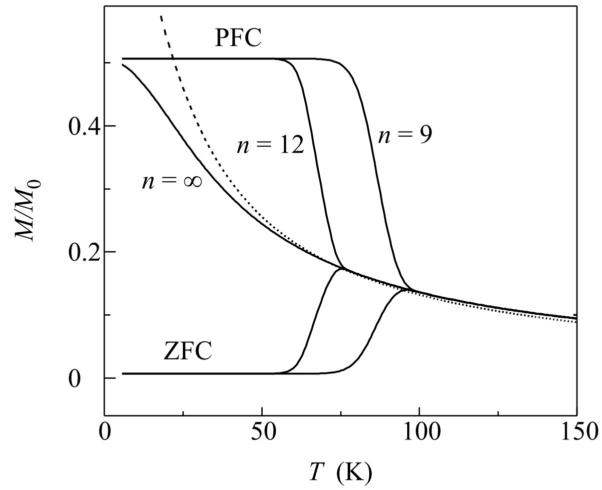
Вместе с тем в заключении [1] было специально отмечено, что "более точные модели могут в значительной степени скорректировать результаты анализа в обобщенной модели СВ", что естественно подразумевало продолжение исследований в этом направлении, чем я и занимаюсь в последнее время, а результаты, часть из которых приведена в конце этой заметки, будут вскоре опубликованы. В такой ситуации я бы не удивился появлению чьей-то статьи с решением указанных выше проблем в рамках более совершенных моделей и вполне ожидаемой конструктивной критикой результатов [1]. В комментарии [2] конструктивная часть отсутствует. Отвечу на замечания по порядку.

1. Авторам [2] очень сильно не понравилось утверждение " ... the magnetization in the PFC and NFC regimes is larger and smaller than the equilibrium value, respectively", которое, по их словам, было сказано по поводу рис.2 в [1]. На самом деле, это выражение находится во введении и отражает суть методики приготовления разных неравновесных низкотемпературных состояний (см. [1]), я бы не стал повторять это общее утверждение по отношению к конкретным результатам. Мало этого, в качестве подтверждения своего мнения авторы [2] приводят рис.1, утверждая, что представленные на нем кривые PFC и ZFC для разных характерных времен τ_m рассчитаны по формулам в [1]. Но этого не может быть. Во-первых, в [1] нет параметра τ_m. Но даже если предположить, что этот параметр как-то связан с единственным параметром Δt, характеризующим время измерения в [1], начальная низкотемпературная намагниченность $M(T_0)$ в соответствии с (9) и (10) в [1] не зависит от времени измерения, а на рис.1 в [2] это не так.

Температурные зависимости намагниченности ансамбля наночастиц в разных режимах охлаждения, *правильно* рассчитанные по формулам [1] в зависимости от эффективного релаксационного параметра $\tilde{p}_0$, который пропорционален времени измерения, показаны на рисунке. Этот рисунок также иллюстрирует упомянутое выше общее утверждение.

2. Второе замечание авторов [2] выглядит странно: "The second error ... is that the Langevin curve does not represent the thermal equilibrium condition in a system has a not negligible anisotropy ... Although Chuev does not explicitly mention this, Fig.2 and also the commentary associated to it, indicates that this is intention of the author". То есть авторы [2] считают, что хотя "вторая ошибка" из первого предложения приведенной выше цитаты впрямую в статье [1] не допущена, но я безусловно намеревался ее сделать в неявной форме. На самом деле, в статье [1] точно

1) e-mail: chuev@ftian.ru



Температурные зависимости намагниченности ансамбля наночастиц в режимах PFC и ZFC (сплошные линии), рассчитанные в обобщенной модели СВ ($h = 0.01$, $KV/k = 2000\,\mathrm{K}$) для разных значений $\tilde{p}_0 = 10^n\,\mathrm{K}^{-1}$. Кривая с $n = \infty$ соответствует равновесной намагниченности. Пунктирная линия – кривая ланжевеновской намагниченности для заданного набора параметров, рассчитанная по формуле (3) в [1]

указано: 1) " ... равновесные заселенности локальных минимумов определяются принципом детального равновесия (5)", *а не функцией Ланжевена (!!!)*, и 2) даже в упомянутом комментарии к рис.2 в [1] сказано: "в слабых магнитных полях при $T > T_{\rm eq}$ намагниченность ансамбля частиц слабо *отличается от ланжевеновской намагниченности* (3) ... С ростом напряженности внешнего поля *отклонение* намагниченности ансамбля частиц СВ *от ланжевенского поведения увеличивается* ... " Очевидно также, что кривые ланжевеновской намагниченности приведены в статье [1] только для сравнения.

Это замечание авторов [2] сопровождается рис.2 в [2], который, по идее авторов, должен иллюстрировать неправильность формул для намагниченности в низкотемпературном пределе в [1], а на самом деле снова иллюстрирует неправильность их расчетов по моим формулам в [1], как отчетливо показывает все тот же данный рисунок.

3. Как я уже отметил во введении, третье замечание авторов [2] по поводу справедливости высокотемпературного предела намагниченности в [1] имеет под собой реальную почву. К сожалению, и здесь не обошлось без ошибки, поскольку в рамках стандартного статистического усреднения по формулам (6) и (7) в [2] высокотемпературный предел намагниченности выражается не формулой (8) в [2], а другим выражением:

$$M/M_0 \approx \frac{x}{3}\left(1 + \frac{1}{15}\frac{KV}{kT}\right) + \dots \qquad (1)$$

Однако суть проблемы не в этом. Общая теория стохастической релаксации однородной намагниченности $\mathbf{M}$ статистического ансамбля однодоменных частиц основана на "уравнении Ланжевена" [3]:

$$d\mathbf{M}/dt = \gamma\mathbf{M} \times [\mathbf{H}_{\rm eff} - \eta d\mathbf{M}/dt + \mathbf{h}(t)], \qquad (2)$$

где γ – гиромагнитное отношение, η – коэффициент диссипации, $\mathbf{h}(t)$ – быстро флуктуирующее "хаотическое поле",

$$\mathbf{H}_{\rm eff} \equiv \mathbf{H}_{\rm eff}(\theta, \varphi) = -V\nabla E(\theta, \varphi)/M_0, \qquad (3)$$

θ и φ – полярный и азимутальный углы, определяющие направление вектора $\mathbf{M}$, для нашего случая

$$E(\theta, \varphi) = -K\cos^2\theta - \mathbf{HM} \qquad (4)$$

– плотность энергии частицы во внешнем поле $\mathbf{H}$, здесь и далее необозначенные параметры определены в [1]. Уравнения (2)–(4) описывают прецессию вектора $\mathbf{M}$ вокруг "легкой" оси в эффективном поле $\mathbf{H}_{\rm eff}$, снос в направлении локальных минимумов энергии (4) и изотропную диффузию, заданную стохастическим процессом $\mathbf{h}(t)$.

Начиная с классической работы [3] и до настоящего времени, аналитические свойства дифференциального уравнения (2) исследуются в простейшем случае продольной релаксации, когда внешнее поле направлено вдоль оси магнитной анизотропии. В этом случае потенциал (4) становится аксиально-симметричным, однородная прецессия не влияет на релаксационные свойства, а заселенности состояний $W(\theta, \varphi)$ не зависят от азимутального угла φ. Тогда равновесное состояние ансамбля частиц описывается распределением Гиббса по стохастическим состояниям, то есть прецессионным орбитам конца вектора $\mathbf{M}$ на поверхности сферы радиусом M_0 вокруг "легкой" оси с заданным θ:

$$W(\theta) \propto \exp\,[-E(\theta)V/kT]. \qquad (5)$$

В этом случае равновесное значение средней намагниченности ансамбля частиц действительно определяется статистическими суммами типа (6) и (7) в [2].

Для решения реальной задачи с хаотическим распределением осей анизотропии частиц необходимо рассматривать произвольную ориентацию вектора $\mathbf{H}$ по отношению к оси магнитной анизотропии в (4), то есть учитывать зависимость от угла φ в (2)–(4). Наиболее существенными моментами в этой изменившейся ситуации являются усложнение формы релаксационной матрицы, заданной уравнением (2), и появление уже неоднородной прецессии в эффективном поле (3). Например, в магнитном поле, напряженность которого меньше критического значения $H_{\rm C}(\theta)$ [1], вектор $\mathbf{M}$ для заданного значения энергии

E в отсутствие диссипации описывает коническую поверхность вокруг одного из трех полюсов, соответствующих двум локальным минимумам и абсолютному максимуму энергии (4). При этом угловая скорость прецессии, задаваемая эффективным полем (3), непрерывно изменяется как по величине, так и по направлению вдоль каждой траектории C_E в соответствии с очевидным соотношением:

$$\mathbf{\Omega}_E(\theta,\varphi) = -\gamma \mathbf{H}_{\text{eff}}^{(E)}(\theta,\varphi), \qquad (6)$$

В такой ситуации, если характерная частота изотропной диффузии, заданная параметрами η и $\mathbf{h}(t)$ в (1), не предельно сильно превышает характерную частоту прецессии вдоль заданной траектории C_E, заселенности состояний $W_E(\theta,\varphi)$ с одной и той же энергией E в разных точках (θ,φ) этой траектории будут различаться в обратной пропорции к мгновенной угловой скорости в этих точках. Естественно, что в этом случае схема расчета средних значений намагниченности на основе стандартных статистических сумм типа (6) и (7) в [2] не работает, а соответствующая аргументация в [2] не имеет никакого смысла.

В этом случае в качестве стохастических состояний каждой частицы можно рассмотреть сами прецессионные орбиты C_E. Тогда каждое состояние (орбиту) можно характеризовать средним значением намагниченности $\overline{\mathbf{M}}(E)$, которое с учетом (2)–(4) определяется эллиптическими интегралами вдоль соответствующей траектории C_E. Далее необходимо определить вероятности перехода в единицу времени между стохастическими состояниями, заданными, например, статистическими характеристиками случайного поля $\mathbf{h}(t)$ по аналогии с [3]. Тем самым, будет определена модель магнитной динамики, на основе которой можно проводить расчеты магнитных характеристик в разных методах измерения.

Исследования в этом направлении будут продолжены, а здесь можно отметить, что равновесное состояние ансамбля частиц в этом представлении описывается распределением по стохастическим состояниям (орбитам) с заданным значением E:

$$W_i(E,T) = \frac{1}{Z}\exp\left(-EV/kT\right)\int\limits_{C_{Ei}} d\Omega, \qquad (7a)$$

где интеграл берется по телесному углу вдоль заданной траектории C_{Ei}, индекс i нумерует разные локальные состояния, соответствующие одной и той же энергии E, а нормировочная константа Z задана условием

$$\int dE \sum_i W_i(E,T) = 1. \qquad (7b)$$

Тогда средняя намагниченность группы частиц с заданным Θ (угол между направлением $\mathbf{H}$ и осью легчайшего намагничивания частицы) определяется очевидным выражением:

$$\overline{\mathbf{M}}(\Theta,T) = \int dE \sum_i \overline{\mathbf{M}}_i(E) W_i(E,T). \qquad (8)$$

Средняя намагниченность ансамбля частиц определяется усреднением (9) по хаотическому распределению осей анизотропии в соответствии с (11) в [1].

Такой подход позволяет рассчитать температурную зависимость равновесной намагниченности ансамбля наночастиц для заданных значений параметров H, K, V, M_0. Предварительные расчеты показывают, что качественное отличие высокотемпературного предела намагниченности и восприимчивости в слабых магнитных полях от ланжевеновского, предсказанное в [1], сохраняется и в модели (7), (8), хотя асимптотический предел восприимчивости зависит от внешнего поля в отличие от обобщенной модели СВ в [1].

В заключение отмечу, что, как и в случае обобщенной модели СВ [1], высокотемпературное асимптотическое поведение намагниченности и восприимчивости в модели (7)–(8) будет модулироваться температурной зависимостью однородной намагниченности самих ферромагнитных частиц $M_0(T)$, так что никакого нарушения общих принципов термодинамики в обеих моделях нет: $M(T > T_{\text{C}}) = 0$ (T_{C} – температура Кюри в объеме частиц). Однако если при $T = T_d < T_{\text{C}}$ характерная частота изотропной диффузии станет много больше максимальной частоты прецессии в абсолютном минимуме энергии (4), в интервале $T_d < T < T_{\text{C}}$ успеет реализоваться "ланжевеновский" высокотемпературный предел с поправкой на анизотропию (1). В промежуточном случае $T \approx T_d$ при высоких температурах должен наблюдаться плавный переход от асимптотического к ланжевеновскому поведению в зависимости от конкретных параметров исследуемого ансамбля частиц.

Я благодарен Российскому фонду фундаментальных исследований за финансовую поддержку этой работы (грант # 08-02-00388).

1. М. А. Чуев, Письма в ЖЭТФ **85**, 744 (2007) [JETP Lett. **85**, 611 (2007)].
2. E. De Biasi, R. D. Zysler, C. A. Ramos, and M. Knobel, Письма в ЖЭТФ **87** 803 (2008).
3. W. F. Brown, Jr., Phys. Rev. **130**, 1677 (1963).