

ФЕРРОМАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС В ОДНООСНЫХ НАНОЧАСТИЦАХ: РОЛЬ ТЕПЛОВЫХ ФЛУКТУАЦИЙ*

И.С. Поперечный, *Институт механики сплошных сред УрО РАН; Пермский национальный исследовательский политехнический университет*

В.И. Степанов, *Институт механики сплошных сред УрО РАН*

А.М. Биллер, *Институт механики сплошных сред УрО РАН*

П.В. Меленев, *Институт механики сплошных сред УрО РАН*

Представлена последовательная теория ферромагнитного резонанса в суперпарамагнитных частицах с одноосной анизотропией произвольной величины. Разработанный подход не накладывает ограничений ни на материальные параметры частиц, ни на характеристики спектрометра и может быть использован как для интерпретации экспериментальных данных, так и для оценки пригодности приближенных теорий. Рассчитаны резонансные спектры ансамблей невзаимодействующих случайно ориентированных наночастиц. Показано, что линия поглощения может содержать несколько максимумов, если значение температуры не превышает некоторого порога, определяемого соотношением между интенсивностью тепловых флуктуаций и величиной анизотропии. Разрешение отдельных компонент спектра повышается с увеличением добротности частиц. Показано, что зависимость ширины спектра от температуры немонотонна: нагрев системы сначала вызывает сужение линии поглощения, а затем – ее расширение. Температура, при которой ширина линии минимальна, увеличивается с ростом анизотропии диспергированных частиц.

Ключевые слова: ферромагнитный резонанс, суперпарамагнетизм, наночастица.

Введение

Магнитный резонанс – один из самых мощных методов изучения свойств динамики спиновых ансамблей. Анализ высокочастотных свойств пара- и ферромагнетиков позволяет извлечь важные сведения о фундаментальных особенностях этих систем. Ферромагнитный резонанс (ФМР), ставший классическим методом изучения массивных кристаллов, тонких пленок и микрочастиц, получил новый

импульс к развитию как теории, так и эксперимента после появления нанотехнологий. В приложении к наноразмерным (однодоменным) частицам стандартный подход ФМР феноменологии (уравнение Ландау–Лифшица–Гильберта) столкнулся принципиальной трудностью. Дело в том, что недопустимо в таких частицах описывать магнитодинамические процессы как атермические, пренебрегая тепловыми флуктуациями магнитных моментов час-

* Работа выполнена при поддержке РФФИ и Правительства Пермского края (грант № 14-02-96002).

тиц – их неелевским суперпарамагнетизмом. К настоящему времени имеется несколько вариантов приближённой теории ФМР суперпарамагнитных частиц, см. например, [1–4]. Большинство из них используют предположение о том, что внешнее поле много больше поля анизотропии. Между тем во многих экспериментах это условие не выполняется. В настоящей работе представлена последовательная теория ФМР в суперпарамагнитных наночастицах с одноосной анизотропией произвольной величины.

Ферромагнитный резонанс

Рассмотрим однодоменную частицу объемом v , которая обладает анизотропией типа «легкая ось» и намагнитченностью насыщения M_s . Частица закреплена в твердой матрице, к ней приложено постоянное (подмагничивающее) поле H_0 . Прецессия магнитного момента μ возбуждается полем $h(t)$ с частотой $\omega \sim 60 \cdot 10^9$ рад/с, имеющим малую величину: $h(t) \ll H_0$. Направление оси легкого намагничивания частицы задается единичным вектором n , который составляет произвольный угол ψ с подмагничивающим полем. Ориентационно-зависимая часть энергии частицы

$$U = -\mu \cdot H_0 - \mu \cdot h(t) - Kv(e \cdot n)^2 \quad (1)$$

где $e = \mu/M_s v$ – единичный вектор магнитного момента, а K – константа одноосной анизотропии. В формуле (1) первые два слагаемые выражают энергию Зеемана, а последнее – энергию одноосной анизотропии. Для дальнейшего рассмотрения удобно ввести в рассмотрение безразмерные величины для магнитных полей – $Q = \gamma H_0/\omega$ и $q(t) = \gamma h(t)/\omega$, анизотропии – $\varepsilon = \gamma K/\omega M_s$ и обратной температуры $\xi_L = \mu\omega/\gamma k_B T$.

Основу феноменологической теории ФМР в суперпарамагнетиках составляет кинетическое уравнение Брауна [5], определяющее эволюцию ориентационной

функции распределения $W(e, t)$ магнитного момента:

$$2\tau_D \frac{\partial W}{\partial t} = \mathcal{J} \cdot W \left(\mathcal{J} + \frac{1}{\alpha} \nabla \right) \left(\ln W + \frac{U}{k_B T} \right); \quad (2)$$

здесь $\nabla = \frac{\partial}{\partial e}$ – оператор градиента на

единичной сфере, $\mathcal{J} = e \times \nabla$ – оператор бесконечно малого поворота, U – магнитная энергия (1),

$\tau_D = (1 + \alpha^2)\mu / (2\alpha\gamma k_B T)$ – характерное время вращательной диффузии магнитного момента, γ – гиромагнитное (магнито-механическое) отношение для электронов, а α – константа затухания прецессии магнитного момента.

Для решения уравнения (2) представим функцию распределения в виде ряда по нормированным сферическим гармоникам:

$$W(\vartheta, \varphi, t) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{k=-l}^{k=l} b_{l,k}(t) Y_{l,k}(\vartheta, \varphi), \quad (3)$$

определяемым согласно

$$Y_{l,k}(\vartheta, \varphi) = (-1)^k \sqrt{\frac{(2l+1)(l-k)!}{4\pi(l+k)!}} P_{l,k}(\cos \vartheta) e^{ik\varphi}, \quad (4)$$

$$-l \leq k \leq l,$$

$$Y_{l,k}^* = (-1)^k Y_{l,-k},$$

где $P_{l,k}$ – присоединенные полиномы Лежандра, а ϑ и φ – полярный и азимутальный углы вектора e . Подстановка ряда (3) в (2) приводит к системе рекуррентных уравнений для величин $b_{l,k}(t)$. Пользуясь условием $h \ll H_0$, представим моменты $b_{l,k}(t)$ в виде суммы равновесного значения и малой неравновесной добавки $b_{l,k} = b_{l,k}^0 + \delta b_{l,k}(t)$. Полагая $\delta b_{l,k} \ll b_{l,k}^0$, линеаризуем полученную систему и выполним ее фурье-преобразование. Это дает систему линейных уравнений относительно фурье-коэффициентов $\delta b_{l,k}^{\omega}$, комбинации которых определяют динамический магнитный момент частицы δe^{ω} .

Будем считать, что гармоническое зондирующее поле q спектрометра лежит в плоскости xOy , ортогональной постоянному полю Q , и имеет правую круговую поляризацию, что типично для экспериментов по ФМР. В этом случае главной характеристикой ФМР является динамическая восприимчивость $\chi_+ = \delta e_+^{\omega} / q_+$, устанавливающая связь между циркулярными компонентами магнитного момента $\delta e_+^{\omega} = \delta e_x^{\omega} + i\delta e_y^{\omega}$ и пробного поля $q_+^{\omega} = q_x^{\omega} + iq_y^{\omega}$. В типичном ФМР-эксперименте измеряется производная по намагничивающему полю от энергии, поглощаемой за цикл изменения зондирующего поля. В наших обозначениях теоретической моделью этой функции является зависимость производной мнимой части

динамической восприимчивости $d\chi_+'' / dQ$ от безразмерного поля Q .

Результаты

В подавляющем большинстве экспериментов по ФМР исследуются дисперсии наночастиц, оси легкого намагничивания которых распределены случайно. В рамках нашего подхода мы рассмотрели модельный ансамбль частиц со случайной ориентацией и рассчитали его спектр, усреднив парциальные линии поглощения по углу ψ . Результаты расчета для различных значений температуры и параметра затухания прецессии представлены на рис. 1. Как видно, при достаточно высокой температуре ($\xi_L = 1$, штрихпунктирные кривые) спектральные линии в целом симметричны, и резонансное поле,

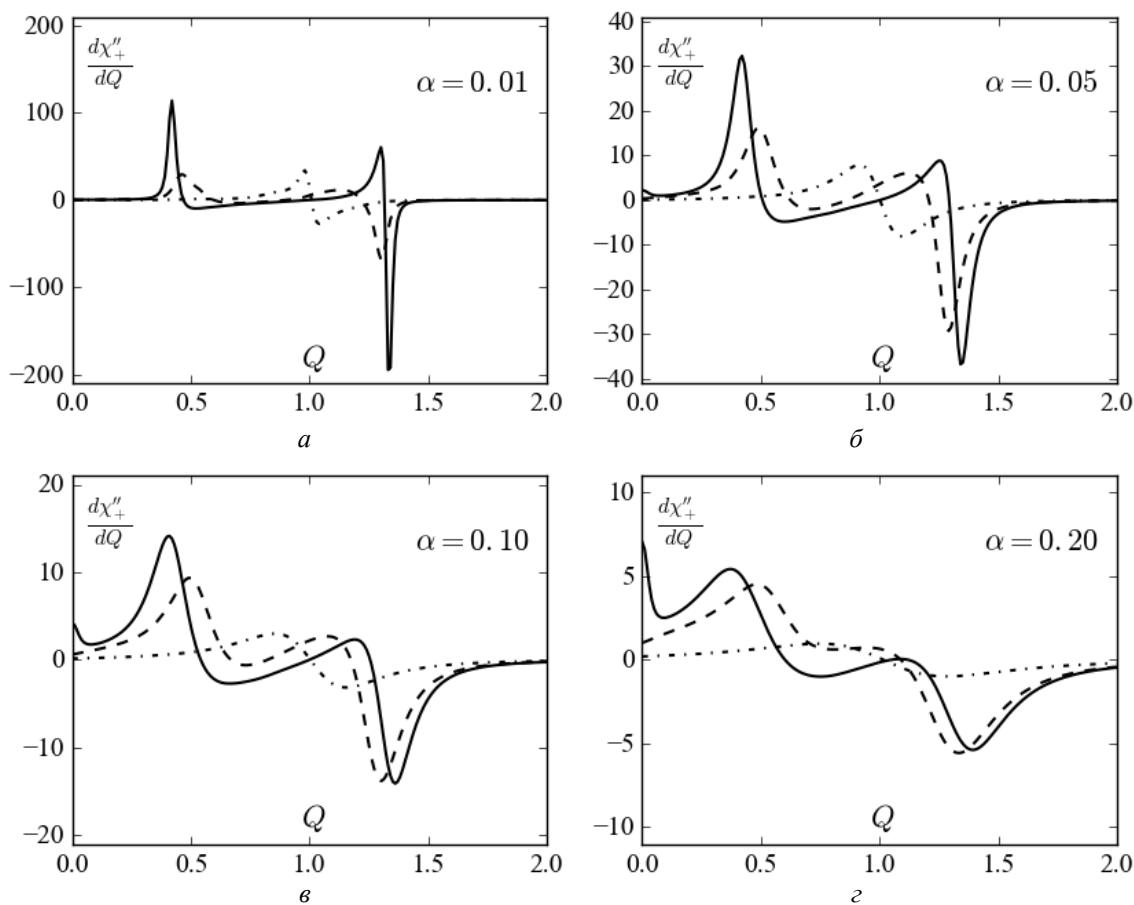


Рис. 1. ФМР-спектры ансамбля случайно ориентированных частиц для параметра затухания $\alpha = 0,01$ (а), $0,05$ (б), $0,1$ (в) и $0,2$ (г) при различных значениях обратной температуры: $\xi_L = 1$ (штрихпунктирные линии), 10 (пунктирные линии), 50 (сплошные линии); параметр анизотропии $\varepsilon = 0,3$

определяемое из условия $d\chi_+''/dQ = 0$, имеет значение, близкое к $Q_r = 1$. При пониженных температурах ($\xi_L = 10$, пунктирные кривые) спектры, напротив, несимметричны и заметно уширены. Кроме того, линия ФМР расщеплена и содержит две компоненты, для одной из которых резонансное поле $Q_r > 1$, а для другой, наоборот, $Q_r < 1$. Дальнейшее понижение температуры (см. сплошные линии) приводит к сдвигу компонент в разные стороны. Видно, что положение и высота резонансных пиков также зависят от величины константы затухания (см. сплошные линии на рис. 1). Очевидно, уменьшение добротности частицы подавляет расщепление спектра и уменьшает разрешение его компонент.

Температурные зависимости резонансного поля Q_r , а также ширины спектра ΔQ для различных значений параметра анизотропии ε представлены на рис. 2. Величина ΔQ определена как разность между позициями крайнего правого и крайнего левого пиков на оси Q . Из рис. 2, б следует, что температурная зави-

симость ΔQ немонотонна: нагрев системы сначала вызывает сужение линии, а затем – ее расширение. Этот эффект впервые был описан в работе Райхера и Степанова [4] применительно к частицам с малой анизотропией. Согласно [4], большая величина ΔQ при низких температурах возникает вследствие разброса направлений осей анизотропии (неоднородное уширение), а при высоких – обусловлена ростом интенсивности тепловых флуктуаций (однородное суперпарамагнитное уширение). Как показывает рис. 2, б, при умеренной и большой анизотропии (пунктирная и сплошная кривые, соответственно) температурная зависимость величины ΔQ также немонотонна, однако переход от сужения спектра к его расширению начинается при более высокой температуре и происходит более резко. Линия поглощения ансамбля частиц с высокой анизотропией специфична тем, что в области низких температур ($0,02 \leq \xi_L^{-1} \propto T < 0,05$) она имеет не две, а три компоненты (см. сплошные линии на рис. 2, а). Из-за этого в указанном температурном диапазоне ширина спектра

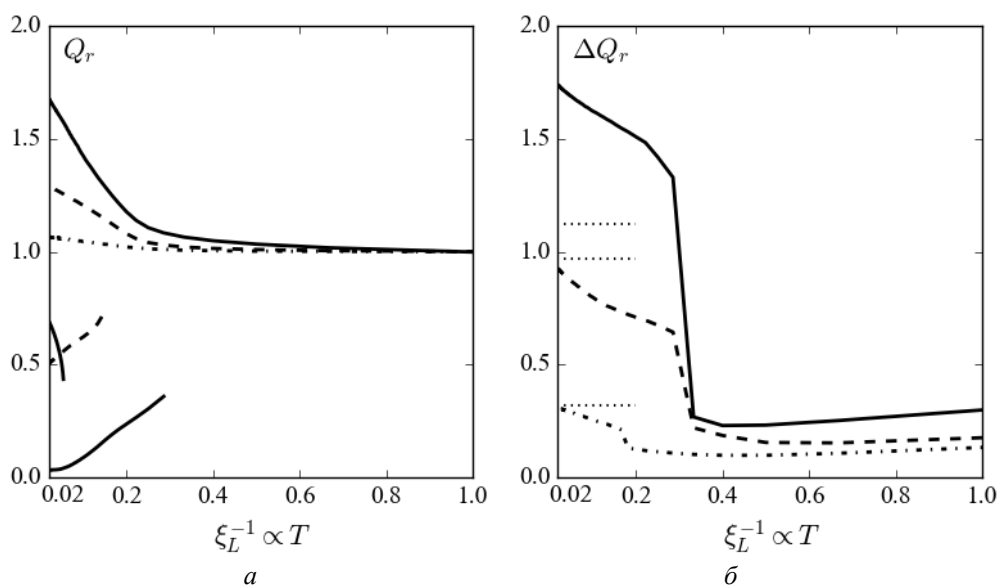


Рис. 2. Температурные зависимости резонансного поля Q_r (а) и ширины линии ΔQ (б) ансамбля случайно ориентированных частиц при разных значениях параметра анизотропии: $\varepsilon = 0,1$ (штрихпунктирные линии), $\varepsilon = 0,3$ (пунктирные линии) и $\varepsilon = 0,6$ (сплошные линии). Точками показано значение ΔQ в атермическом пределе. Параметр затухания $\alpha = 0,05$

больше, а не меньше атермического предела (см. рис. 2, б), то есть суперпарамагнитное и неоднородное уширения дополняют друг друга. По мере охлаждения системы дополнительный – низкополевой – максимум смещается влево, а затем исчезает вовсе; при этом ширина спектра приближается к своему предельному значению. Ансамбль частиц с умеренной анизотропией имеет в спектре не более двух компонент [см. пунктирные кривые на рис. 2, а]. При этом второй (низкополевой) проявляется только при не очень высоких температурах: $\xi_L^{-1} < 0,2$.

Дополнительные резонансные пики наблюдались экспериментально Ногиновой и соавторами [2] при измерении ФМР в наночастицах маггемита. В полученных спектрах самый сильный из дополнительных резонансов возникал при величине поля $Q_r^{(2)} \approx Q_r^{(1)}/2$, где $Q_r^{(1)}$ – положение основного пика. Это соотношение нахо-

дится в хорошем согласии с нашими расчетами при разных величинах анизотропии и температуры [см. пары пунктирных и сплошных линий на рис. 2].

Заключение

Представлена последовательная теория высокочастотной магнитодинамики суперпарамагнитных частиц с одноосной анизотропией произвольной величины. На основе предложенного подхода изучен ФМР в ансамблях невзаимодействующих наночастиц при различных температурах. Показано, что резонансный спектр может содержать несколько компонент, если температура не превышает некоторого порога, который зависит от величины анизотропии частиц. При температурах выше указанного порога спектры в целом симметричны, а резонансное поле близко к значению ω/γ , отвечающее изотропному магнетику.

Библиографический список

1. Berger R., Bissey J.-C., Kliava J., Daubric H., Estournes C. // J. Magn. Magn. Mater. – 2001. – Vol. 234. – P. 535–544.
2. Noginova N., Weaver T., Giannelis E.P., Bourlinos A.B., Atsarkin V.A., Demidov V.V. // Phys. Rev. B. – 2008. – Vol. 77. – Art. no. 014403.
3. De Biasi E., Lima (Jr.) E., Ramos C.A., Butera A., Zysler R.D. // J. Magn. Magn. Mater. – 2013. – Vol. 326. – P. 138–146.
4. Raikher Yu.L., Stepanov V.I. // ЖЭТФ. – 1992, – Vol. 102. – P. 1409–1423.
5. Brown W.F. // Phys. Rev. – 1963. – Vol. 130. – P. 1677–1686.

FERROMAGNETIC RESONANCE IN UNIAXIAL NANOPARTICLES: THE ROLE OF THERMAL FLUCTUATIONS

I.S. Poperechny^{1,2}, V.I. Stepanov¹, A.M. Biller¹, P.V. Melenev¹

¹ Institute of Continuous Media Mechanics RAS UD

² Perm National Research Polytechnic University

A consistent theory of ferromagnetic resonance in superparamagnetic nanoparticles with uniaxial anisotropy of arbitrary strength is developed. The approach is free from restrictions on the spectrometer characteristics and the material parameters of the particles and is well suitable for the interpretation of experimental data as well as for the validation of approximate models. Ferromagnetic resonance spectra of ensembles of non-interacting randomly oriented nanoparticles are presented. It is shown that an absorption line can consist of several maxima if the temperature is below a certain level defined by the interplay between the intensity of thermal fluctuations and the anisotropy magnitude. The resolution of individual components of the spectrum goes up with an increase in the quality factor of the particles. It is shown that the temperature dependence on the spectral width is

non-monotonic: heating of the system first causes narrowing of the absorption line but then its expansion. The temperature at which the width is minimal increases when the anisotropy of dispersed particles goes up.

Keywords: ferromagnetic resonance, superparamagnetism, nanoparticle.

Сведения об авторах

Поперечный Игорь Сергеевич, кандидат физико-математических наук, научный сотрудник, Институт механики сплошных сред УрО РАН (ИМСС УрО РАН), 614013, г. Пермь, ул. Академика Королева, 1; доцент кафедры прикладной физики, Пермский национальный исследовательский политехнический университет (ПНИПУ), 614990, г. Пермь, Комсомольский пр-т, 29; e-mail: roperechny@icmm.ru

Степанов Виктор Иванович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, ИМСС УрО РАН; e-mail: stepanov@icmm.ru

Биллер Анастасия Михайловна, младший научный сотрудник, ИМСС УрО РАН; e-mail: kam@icmm.ru

Меленев Петр Викторович, кандидат физико-математических наук, инженер, ИМСС УрО РАН; e-mail: melenev@icmm.ru

Материал поступил в редакцию 21.10.2016 г.