ФИЗИКА ЗЕМЛИ, 2001, № 4, с. 62-73

УДК 550.3823

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ ЗЕРЕН МАГНЕТИТА СУБМИКРОННЫХ РАЗМЕРОВ

© 2001 г. В. П. Щербаков, Н. К. Сычева

Геофизическая обсерватория "Борок" ОИФЗ им. О.Ю. Шмидта РАН, пос. Борок

Поступила в редакцию 04.11.99 г.

Доменная структура субмикронных зерен магнетита в первую очередь определяется их размером и в меньшей степени - их геометрией. Во всех случаях при размере $d < 50$ нм в них существует только однородная однодоменная (ОД) структура. В частицах магнетита кубической формы при $d =$ = (55.5-110) нм развиваются, по крайней мере, две моды: квазиоднодоменная мода *flower* и мода *curling*. Верхний предел области существования моды *flower* составляет 110 нм. Мода *curling* (с некоторыми усложнениями конфигурации) превалирует во всем рассматриваемом интервале $d =$ - (55.5-500) нм и имеет наименьшую энергию и наибольшую стабильность. Соответственно, мода *flower* почти во всей области ее существования $d =$ (50-110) нм является метастабильной. В частицах магнетита, имеющих форму вытянутого эллипсоида вращения, ОД конфигурация трансформируется непосредственно в моду *curling*, минуя моду *flower*. Критический размер этого перехода для сферы составляет 53.5 нм; при соотношении осей эллипсоида, равного 3.17, зерно находится в стабильном ОД состоянии независимо от ее размера. Полученный в результате расчетов критический размер однодоменности для частиц сферической формы 53.5 нм находится в отличном согласии с аналитической оценкой Эйзенштейна и Аарони [1976] (53.7 нм).

Ключевые слова: микромагнетизм, моделирование, доменная структура, магнетит.

ВВЕДЕНИЕ

Магнитные свойства ферримагнитных зерен горных пород во многом определяются их доменной структурой (ДС), поэтому проблема теоретического и экспериментального исследования ДС является одной из центральных в магнетизме горных пород. Экспериментальное наблюдение ДС малых зерен магнетита субмикронных размеров весьма затруднительно, и здесь можно упомянуть разве только работу [Geib et al., 1996], где на малых зернах титаномаггемита ($d < 2$ мкм) и магнетита ($d < 1$ мкм) авторами обнаружена неклассическая, сложная ДС с изогнутыми доменными стенками. Подобная же ситуация сохранялась до последнего времени и в области теории, где исследователи ограничивались рассмотрением лишь приближенных одно- или двумерных конфигураций. Здесь следует отметить работы Кондорского [1950; 1952], который впервые показал, что в эллипсоидальных частицах однородное распределение спонтанной намагниченности J_s, присущее однодоменной (ОД) конфигурации, сменяется при переходе через критический размер однодоменности d_0 так называемой "закруткой" (*curling*, рис. 1а). Это направление получило дальнейшее развитие в работах [Brown, 1958; 1962; Aharoni, 1966; Eisenstein, Aharbni, 1976], которые дали и строгую численную оценку d_0.

В последние годы широкое развитие вычислительной техники сделало возможным анализ более реалистичных физических моделей и проведение расчетов трехмерных ДС на основе строгих микромагнитных уравнений [Schabes, Bertram, 1988; Williams, Dunlop, 1989; Van, Delia Torre, 1989; Shcherbakov et al., 1990; Schabes, 1991; Enkin, Williams, 1994; Fabian et al., 1996]. При этом было обнаружено, что в малых ферримагнитных частицах, имеющих форму параллелепипеда, ОД состояние сменяется некоторой слабонеоднородной модой, называемой "цветок" (*flower*, рис. 1а), возникающей в таких частицах вследствие неоднородности размагничивающего поля. Заметим, что недавно Usov и Peschany [1994a; 1994b] методом теории возмущений получили и аналитическое решение, описывающее моду *"flower"* для частиц в форме цилиндра или параллелепипеда. С другой стороны, эти же расчеты показали, что при увеличении размера до некоторой критической величины d_f эта мода теряет устойчивость и скачком переходит в моду *"curling"*.

Существенным недостатком упомянутых работ является то, что в них практически отсутствует анализ соответствия ДС, полученных путем компьютерного моделирования, результатам чисто аналитического подхода. Напомним, что такое сравнение, как правило, проводится для под-

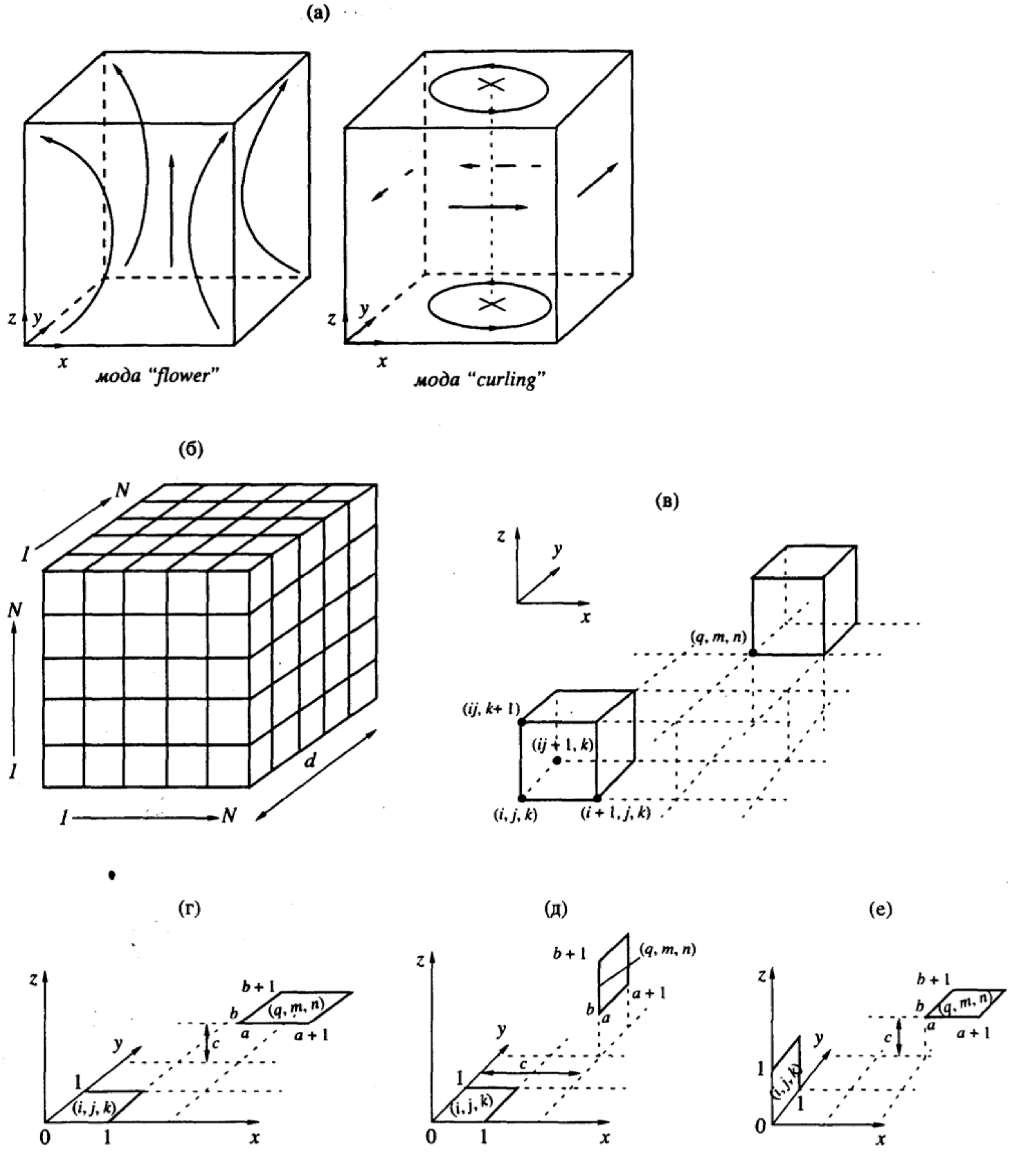

Рис. 1. (а) – возможные типы распределения намагниченности в кубической частице магнетита: мода "*flower*" и мода "*curling*"; (б) – модель кубической частицы магнетита – общая схема индексации ячеек, d – сторона частицы, N – число разбиений ребра куба; (в) – система индексации ячеек при расчете магнитостатического взаимодействия между гранями ячеек (i, j, k) и (q, m, n); (г)–(е) – к расчету магнитостатического взаимодействия.

тверждения справедливости численных расчетов. Для проведения подобного сопоставления требуется, в частности, выполнить численное моделирование микромагнитных уравнений в частицах не только прямоугольной, но и эллипсоидальной формы. Систематизация возможных магнитных конфигураций в частицах магнетита надкритического размера $d > d_0$ в зависимости от их геометрии и размера и сопоставление результатов, полученных аналитически и численно, и является целью настоящей работы.

ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ

Пусть (x, y, z) – декартова система координат, а $\alpha_x, \alpha_y, \alpha_z$ – направляющие косинусы вектора спонтанной намагниченности $\mathbf{I}_s = I_s\mathbf{m}$, где $\mathbf{m}$ – единичный вектор. Полная энергия частицы состоит из суммы обменной энергии $E_{\text{обм}}$, энергии анизотропии $E_{\text{ан}}$, магнитостатической энергии $E_{\text{магн}}$ и энергии магнитострикции $E_{\text{мс}}$:

$$E = E_{\text{обм}} + E_{\text{ан}} + E_{\text{магн}} + E_{\text{мс}}. \quad (1)$$

Плотность обменной энергии и энергии анизотропии выражается в виде [Вонсовский, 1971]:

$$E_{\text{обм}} = -A\mathbf{m}\Delta\mathbf{m} = A(\nabla\mathbf{m})^2, \quad (2)$$

$$E_{\text{ан}} = K_1(\alpha_x^2\alpha_y^2 + \alpha_x^2\alpha_z^2 + \alpha_y^2\alpha_z^2) + K_2\alpha_x^2\alpha_y^2\alpha_z^2, \quad (3)$$

где $A = 2JS^2/a$ – обменная константа, K_1, K_2 – константы анизотропии. Энергия магнитострикции в дальнейших расчетах не учитывалась, поскольку она на 2–3 порядка ниже остальных видов энергий; к тому же ее учет резко увеличивает сложность задачи, так как требует анализа неоднородных упругих спонтанных деформаций, возникающих в неоднодоменных зернах при магнитоупругих воздействиях.

Как всегда, при проведении численных расчетов необходимо перейти от континуальной модели к дискретной. Рассмотрим для простоты кубическое зерно магнетита с ребрами вдоль осей (x, y, z) и проведем его мысленное разбиение на N^3 меньших кубиков, где N – число разбиений ребра куба, размер ребра одного кубика d/N (рис. 1б). Целые числа (i, j, k) являются координатами каждой ячейки в трех ортогональных осях x, y, z. В пределах каждой ячейки направление вектора намагниченности предполагается постоянным (т.е. $\operatorname{div}\mathbf{I}_s = 0$), тогда магнитостатическая энергия определяется поверхностными магнитными зарядами σ, сосредоточенными на гранях каждой из ячеек. Пусть $\alpha_x(i, j, k), \alpha_y(i, j, k), \alpha_z(i, j, k)$ – направляющие косинусы вектора намагниченности для ячейки с номером (i, j, k). Для грани, параллельной плоскости (x, y), $\sigma = I_s\sigma_{xy}(i, j, k)$, где:

$$\sigma_{xy}(i, j, k) = \begin{cases} \alpha_z(i, j, k) - \alpha_z(i, j, k-1), & k = 2, \ldots, N+1, \\ \alpha_z(i, j, k), & k = 1 \end{cases} \quad (4)$$

аналогично для $\sigma_{xz}(i, j, k)$ и $\sigma_{yz}(i, j, k)$. Магнитостатическая энергия $E_{\text{магн}}(i, j, k)$ для (i, j, k)-той ячейки равна сумме собственной энергии граней этой ячейки и энергии их взаимодействия с другими гранями (рис. 1в). В матричной форме:

$$E_{\text{магн}}(i, j, k) = \frac{\mu_0 I_s^2}{4\pi}\left(\frac{d}{N}\right)^3 \sigma_{rt}(i, j, k)V_{rt}(i, j, k), \quad (5)$$

где по повторяющимся индексам $r, t = x, y, z$ осуществляется суммирование, а

$$V_{rt}(i, j, k) = \sum_{q, m, n = 1}^{N+1} \sigma_{r_1t_1}(q, m, n)W_{rtr_1t_1}(i-q, j-m, k-n), \quad (6)$$

где суммирование идет по повторяющимся индексам $r_1, t_1 = x, y, z$. Так как грани, параллельные плоскостям типа (x, x), не имеют смысла, а грань, параллельная плоскости (x, y), тождественна грани, параллельной плоскости (y, x) и т.д., то в формуле (6), например, при $r = x, t = y$ под знаком суммы фактически будет три слагаемых: $(\sigma_{xy}W_{xyxy} + \sigma_{xz}W_{xyxz} + \sigma_{yz}W_{xyyz})$.

Для расчета компонент матрицы взаимодействия $W_{rtr_1t_1}(i-q, j-m, k-n)$ поместим начало координат в узел сетки (i, j, k). Рассмотрим вначале взаимодействие между гранями ячеек (i, j, k) и (q, m, n), параллельными плоскости (x, y) (рис. 1г), когда $r = r_1 = x, t = t_1 = y$:

$$W_{xyxy}(a, b, c) = \int_b^{b+1} dy_1 \int_0^1 dy_2 \int_0^1 dx_2 \int_a^{a+1} \frac{dx_1}{\sqrt{(x_2-x_1)^2 + (y_2-y_1)^2 + c^2}}, \quad (7)$$

здесь $a = i - q, b = j - m, c = k - n$. Аналогично можно записать выражения для W_{xzxz}, W_{yzyz}.

Рассмотрим теперь взаимодействие взаимно перпендикулярных граней, например, грани ячейки (i, j, k), параллельной плоскости (x, y) с гранью ячейки (q, m, n), параллельной плоскости (y, z) (рис. 1д). Аналогично формуле (7) можно записать:

$$W_{xyyz}(a, b, c) = \int_b^{b+1} dz_1 \int_0^1 dx_2 \int_0^1 dy_2 \int_a^{a+1} \frac{dy_1}{\sqrt{(x_2-c)^2 + (y_2-y_1)^2 + z_1^2}}, \quad (8)$$

где $a = j - m, b = k - n, c = i - q$. Если же рассматривается взаимодействие грани ячейки (i, j, k), параллельной плоскости (y, z), с гранью ячейки (q, m, n), параллельной плоскости (x, y) (рис. 1е), то:

$$W_{yzxy}(a, b, c) = \int_b^{b+1} dx_1 \int_0^1 dz_2 \int_0^1 dy_2 \int_a^{a+1} \frac{dy_1}{\sqrt{x_1^2 + (y_2-y_1)^2 + (z_2-c)^2}}, \quad (9)$$

где $a = i - q, b = j - m, c = k - n$. Аналогично можно записать выражения для $W_{xzxy}, W_{xyxz}, W_{xzyz}, W_{yzxz}$. Интегрирование выражений (7), (8), (9) по трем переменным было выполнено аналитически, следуя работе [Rhodes, Rowlands, 1954]. Интегрирование по четвертой переменной можно провести аналитически только для параллельных граней, т.е. при вычислении компонент W_{xyxy}, W_{xzxz}, W_{yzyz}, определяемых выражениями типа формулы (7). Поэтому интеграция во всех случаях проводилась численным методом. Для проверки правильности расчетов результат численного интегрирования выражений для W_{xyxy}, W_{xzxz}, W_{yzyz} сравнивался с аналитическим решением [Rhodes, Rowlands, 1954].

При расчете обменной энергии использовалась пятиточечная аппроксимация оператора Лапласа по методу конечных разностей [Fabian et al., 1996]:

$$\Delta\alpha_x(i,j,k) \approx$$
$$\approx \frac{1}{12(d/N)^2}[-90\alpha_x(i,j,k) + 16(\alpha_x(i\pm 1,j,k) + (\alpha_x(i,j\pm 1,k) + \alpha_x(i,j,k\pm 1)) - \tag{10}$$
$$-(\alpha_x(i\pm 2,j,k) + \alpha_x(i,j\pm 2,k) + \alpha_x(i,j,k\pm 2))].$$

Для ячеек $i, j, k = 1, 2, N-1, N$ использовалась трехточечная разностная схема [Волков, 1987], когда:

$$\Delta\alpha_x(i,j,k) \approx \frac{1}{(d/N)^2}[-6\alpha_x(i,j,k) + \alpha_x(i\pm 1,j,k) + \alpha_x(i,j\pm 1,k) + \alpha_x(i,j,k\pm 1)]. \tag{11}$$

Аналогично (10), (11) записываются выражения для $\Delta\alpha_y(i,j,k)$, $\Delta\alpha_z(i,j,k)$. Заметим, что при расчете обменной энергии необходимо соблюдать граничные условия $\partial\alpha_x/\partial x = 0$ при $x = 0$, $x = d$, $\partial\alpha_y/\partial y = 0$ при $y = 0$, $y = d$, $\partial\alpha_z/\partial z = 0$ при $z = 0$, $z = d$ [Brown, 1958]. В применении к методу конечных разностей это означает выполнение формальных равенств: $\alpha_x(i,j,k) - \alpha_x(i-1,j,k) = 0$ при $i = 1$, $\alpha_x(i+1,j,k) - \alpha_x(i,j,k) = 0$ при $i = N$ и т.д.

С учетом (10), (11) получим вместо (2) и (3) для (i,j,k)-той ячейки:

$$E_{\text{обм}}(i,j,k) = -A\left(\frac{d}{N}\right)^3[\alpha_x(i,j,k)\Delta\alpha_x(i,j,k) + \alpha_y(i,j,k)\Delta\alpha_y(i,j,k) + \alpha_z(i,j,k)\Delta\alpha_z(i,j,k)], \tag{12}$$

$$E_{\text{ан}}(i,j,k) = (d/N)^3(K_1[\alpha_x^2(i,j,k)\alpha_y^2(i,j,k) + \alpha_x^2(i,j,k)\alpha_z^2(i,j,k) + \alpha_y^2(i,j,k)\alpha_z^2(i,j,k)] + K_2\alpha_x^2(i,j,k)\alpha_y^2(i,j,k)\alpha_z^2(i,j,k)). \tag{13}$$

Для расчета направляющих косинусов вектора намагниченности $\mathbf{I}_s$ удобнее перейти в сферическую систему координат (r, θ, φ):

$$\alpha_x(i,j,k) = \cos(\theta(i,j,k))\cos(\varphi(i,j,k)),$$
$$-\pi/2 \le \theta \le \pi/2,$$
$$\alpha_y(i,j,k) = \cos(\theta(i,j,k))\sin(\varphi(i,j,k)), \tag{14}$$
$$-\pi \le \varphi \le \pi,$$
$$\alpha_z(i,j,k) = \sin(\theta(i,j,k)).$$

Теперь задача определения стабильной конфигурации вектора намагниченности $\mathbf{I}_s$ состоит в минимизации полной энергии

$$E = \sum_{i,j,k=1}^{N}(E_{\text{обм}}(i,j,k) + E_{\text{ан}}(i,j,k) + E_{\text{магн}}(i,j,k)) \tag{15}$$

как функции углов $\theta(i,j,k)$ и $\varphi(i,j,k)$ для всех $i, j, k = 1\ldots N$ (т.е. полное число переменных для всего зерна есть $2N^3$). В качестве метода минимизации был выбран метод сопряженных градиентов.

Из (5), (6), (15) видно, что для расчета магнитостатической энергии N^3 ячеек требуется выполнение $(N+1)^6$ операций. Как показывает опыт, уже при $N = 15$ эта задача становится непосильной даже для современных быстродействующих компьютеров. “Прорыв” в решении этой проблемы произошел несколько лет назад, когда было показано [Berkov et al., 1993], что число операций можно существенно уменьшить при использовании алгоритма быстрого преобразования Фурье (БПФ). (Более детальное описание алгоритма расчета магнитостатической энергии с помощью БПФ можно найти в [Fabian et al., 1996].)

Для объяснения сути дела заметим сначала, что структура формулы (6) идентична структуре формулы свертки двух функций. Напомним, что в простейшем одномерном варианте сумма вида $y(k) = \sum_{p=0}^{N-1}x(p)h(k-p) = \sum_{p=0}^{N-1}h(p)x(k-p)$ называется дискретной сверткой функций $h(k)$ и $x(k)$. Важным свойством свертки является то, что ее дискретное преобразование Фурье (ДПФ)

$$Y(n) = \sum_{k=0}^{N-1}y(k)\exp(-2\pi\bar{i}kn/N) \tag{16}$$

есть произведение ДПФ функций $h(k)$ и $x(k)$ ($H(n)$ и $X(n)$ соответственно): $Y(n) = X(n)H(n)$ (здесь $\bar{i} = \sqrt{-1}$). Таким образом, энергия каждой ячейки (формула (5)) является, в сущности, суммой сверток функций $W_{rtr_1t_1}(i-q, j-m, k-n)$ и $\sigma_{r_1t_1}(q,m,n)$ при различных r, t, r_1, t_1. Здесь возникает, однако, некоторая сложность. Для формального применения теоремы свертки необходимо, чтобы обе последовательности $W_{rtr_1t_1}(i-q, j-m, k-n)$ и $\sigma_{r_1t_1}(q, m, n)$ были периодическими с одним и тем же периодом. В то же время последовательность $W_{rtr_1t_1}(i-q, j-m, k-n)$ для $i, j, k, q, m, n = 1, 2, \ldots, N+1$ принимает $2(N+1)$ значение по каждому из индексов $i-q$, $j-m$, $k-n$, в то время как последовательность $\sigma_{r_1t_1}(q, m, n)$ имеет период $(N+1)$ по каждому индексу. Для "борьбы" с этой трудностью был изобретен [Отнес, Эноксон, 1982] так называемый метод "нулей", когда более короткая из последовательностей искусственно продляется до более длинной. Пусть в дальнейшем $\sigma_{r_1t_1}(q, m, n) = 0$ для $N+1 < q, m, n \le 2(N+1)$, и будем рассматривать обе последовательности $W_{rtr_1t_1}(i-q, j-m, k-n)$ и $\sigma_{r_1t_1}(q, m, n)$ периодичными с периодом $2(N+1)$. Формально говоря, при этом исходная кубическая частица вписывается в куб вдвое большего размера, в котором она составляет лишь один октант. Суммируя по всем ячейкам, получим полную магнитостатическую энергию кубической частицы:

$$E_{\text{магн}} = \frac{\mu_0}{4\pi} I_s^2 \left(\frac{d}{N}\right)^3 \sum_{i,j,k=1}^{M} \sigma_{rt}(i,j,k) V_{rt}(i,j,k), \quad (17)$$

где $M = 2(N+1)$, $V_{rtr_1t_1}(i, j, k)$ определяется формулой (6), но суммирование в данном случае производится по последовательности длиной M. При переходе к преобразованию Фурье формула для расчета магнитостатической энергии кубической частицы будет иметь вид

$$E_{\text{магн}} = \frac{\mu_0 I_s^2}{4\pi}\left(\frac{d}{N}\right)^3 \frac{1}{2M^3} \times \sum_{i,j,k=1}^{M} \tilde{\sigma}^*_{rt}(i,j,k) \tilde{\sigma}_{r_1t_1}(i,j,k) \tilde{W}_{rtr_1t_1}(i,j,k), \quad (18)$$

где $\tilde{\sigma}_{r_1t_1}(i, j, k)$, $\tilde{W}_{rtr_1t_1}(i, j, k)$ – ДПФ функций $\sigma_{r_1t_1}(q, m, n)$ и $W_{rtr_1t_1}(i-q, j-m, k-n)$, соответственно, а $\tilde{\sigma}^*_{rt}(i, j, k)$ – числа, комплексно-сопряженные с $\tilde{\sigma}_{rt}(i, j, k)$. Таким образом, вычисление магнитостатической энергии сводится к вычислению произведения БПФ последовательностей $\tilde{\sigma}$, $\tilde{W}$. Согласно теореме Парсеваля [Корн Г. и Корн Т., 1968]:

$$\sum_{w_1, w_2, w_3 = 0}^{M} \sigma_{rt}(w_1, w_2, w_3) V_{rt}(w_1, w_2, w_3) = \frac{1}{M^3} \sum_{v_1, v_2, v_3 = 0}^{M} \tilde{\sigma}^*_{rt}(v_1, v_2, v_3) \tilde{V}_{rt}(v_1, v_2, v_3). \quad (19)$$

Но по теореме свертки $\tilde{V}_{rt}(i, j, k) = \tilde{\sigma}_{r_1t_1}(i, j, k) \times \tilde{W}_{rtr_1t_1}(i, j, k)$, тогда

$$E_{\text{магн}} = \frac{\mu_0 I_s^2}{4\pi}\left(\frac{d}{N}\right)^3 \frac{1}{2M^3} \sum_{i,j,k=1}^{M} \tilde{\sigma}^*_{rt}(i,j,k) \tilde{V}_{rt}(i,j,k), \quad (20)$$

т.е. для получения требуемого значения $E_{\text{магн}}$ достаточно вычислить сумму произведений ДПФ функций σ, W, без проведения обратного дискретного преобразования Фурье.

На первый взгляд, переход к преобразованию Фурье только увеличивает объем вычислений. Действительно, число операций умножения–сложения по формуле (20) теперь составляет $(2(N+1))^3$. С учетом того, что вычисление самих Фурье-компонент (по формулам типа (16), но для трехмерного случая и для функций с периодом $2(N+1)$) также требует $(2(N+1))^3$ операций, полное число операций увеличилось в 2^6 раз за счет удвоения длины последовательности по каждой из координат i, j, k. Как показано в [Berkov et al., 1993], существенный выигрыш во времени здесь может быть получен благодаря применению алгоритма БПФ. Суть БПФ состоит в делении N-точечного ДПФ на два и более ДПФ последовательностей длины, меньшей чем N, каждый из которых можно вычислить отдельно, а затем линейно просуммировать с остальными, чтобы получить ДПФ исходной N-точечной последовательности. Общее количество операций умножения–сложения в этом случае составляет $N\lg_2 N$, т.е. БПФ эффективно при больших значениях N и, чем больше N, тем больше экономия времени.

РЕЗУЛЬТАТЫ

На основе вышеописанной модели проведено исследование ДС зерен магнетита различной геометрической формы и размера. При расчетах были использованы следующие параметры: обменная константа $A = 0.67 \times 10^{-11}$ Дж/м, константы анизотропии $K_1 = -1.36 \times 10^4$ Дж/м^3, $K_2 = -0.44 \times 10^4$ Дж/м^3, намагниченность насыщения $I_s = 4.8 \times 10^5$ А/м [Щербаков и др., 1991]. Расчеты проводились с двойной точностью, с относительной ошибкой в вычислении энергии 10^{-8}.

Для кубических частиц при исходном ОД состоянии рассматривались следующие случаи: 1) легкая ось [111] по диагонали куба; 2) легкая ось [111] вдоль ребра куба. Для каждого из случаев 1), 2) рассчитывались 2 варианта исходного распределения вектора намагниченности: а) вектор намагниченности $\mathbf{I}_s$ направлен строго вдоль легкой оси и б) в исходное распределение $\mathbf{I}_s$ вносилось незначительное однородное возмущение в виде отклонения $\mathbf{I}_s$ от легкой оси (таблица).

Порог разрушения ОД структуры в кубических частицах магнетита в зависимости от исходного начального состояния

	Исходное состояние	Порог разрушения ДС d_0, нм
1	Легкая ось [111] вдоль диагонали куба:	
	а) $\theta = \arcsin(1/\sqrt{3})$, $\varphi = \arccos(1/\sqrt{2})$	100
	б) $\theta = \arcsin(1/\sqrt{3}) - 0.01$, $\varphi = \arccos(1/\sqrt{2}) - 0.01$	100
2	Легкая ось [111] вдоль ребра куба:	
	а) $\theta = \pi/2$, $\varphi = 0$	85
	б) $\theta = \pi/2 - 0.01$, $\varphi = -0.01$	110

При расчете полной энергии в случае 2) удобно ввести новые координаты, где ось z' выбрана в направлении [111], y' – в плоскости $(1\bar{1}0)$, x' – в направлении $[1\bar{1}1]$. Тогда, используя стандартные формулы линейной алгебры, получим:

$$\alpha_x(i, j, k) = \frac{1}{\sqrt{2}}\alpha'_x(i, j, k)\frac{1}{\sqrt{6}}\alpha'_y(i, j, k) + \frac{1}{\sqrt{3}}\alpha'_z(i, j, k),$$

$$\alpha_y(i, j, k) = -\frac{1}{\sqrt{2}}\alpha'_x(i, j, k) + \frac{1}{\sqrt{6}}\alpha'_y(i, j, k) + \frac{1}{\sqrt{3}}\alpha'_z(i, j, k), \quad (21)$$

$$\alpha_z(i, j, k) = -\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}}\alpha'_y(i, j, k) + \frac{1}{\sqrt{3}}\alpha'_z(i, j, k),$$

где $\alpha'_x(i, j, k)$, $\alpha'_y(i, j, k)$, $\alpha'_z(i, j, k)$ – направляющие косинусы в новой системе координат (x', y', z').

Исходная частица разбивалась на $N^3 = 31^3$ ячейки с учетом следующего обстоятельства: при расчете магнитостатической энергии с применением алгоритма БПФ наибольший выигрыш во времени получается, если число взаимодействующих граней $N + 1$ представляет собой степень по основанию 2, поскольку в этом случае применение БПФ наиболее эффективно в смысле экономии времени. Расчеты при заданных начальных условиях начинались с $d = 40$ нм и продолжались до $d = 500$ нм с интервалом 5 нм, при этом равновесное состояние, полученное для частицы предыдущего размера, являлось исходным состоянием для частицы последующего размера.

Результаты расчетов для частиц магнетита кубической формы представлены в таблице и на рис. 2 в диаграммах зависимости от размеров зерна приведенной к единице проекции магнитного момента на ось z и приведенной энергии, полученной делением полной энергии E на $I_s^2 d^3$. Распределение $\mathbf{I}_s$ требует графического вывода, на рис. 3 в качестве примера представлены две последовательности двумерных проекций векторного поля $\mathbf{I}_s(i, j, k)$, которые являются "послойным" изменением распределения $\mathbf{I}_s$ вдоль соответствующей оси (x, y или z), например, в случае проекции вдоль оси x для плоскостей $i = 1, 4, 7, \ldots, 25, 28, 30, 31$. Однако двумерные проекции не дают полного представления о фактической конфигурации, поэтому на рис. 1а, 4 схематически представлена трехмерная картина распределения $\mathbf{I}_s$.

Из рис. 2 видно, что во всех случаях для кубических частиц магнетита при размере $d \le 50$ нм наблюдается практически однородная ОД структура. При $d > 50$ нм ОД конфигурация плавно трансформируется в квазиоднодоменную моду *flower*, что отражается в небольшом падении величины приведенного магнитного момента (рис. 2). Мода *flower* теряет устойчивость и скачком переходит в простую моду *curling* (типа изображенной на рис. 1а) при $d_0 = 85$ нм для случая 2а и $d_0 = 110$ нм для случая 2б, при этом приведенный магнитный момент падает практически до нуля (рис. 2в, 2г). В случае 1а мода *flower* при $d_0 = 100$ нм скачком переходит в конфигурацию, близкую к моде *curling*, приведенный момент при этом равен 0.1. При дальнейшем увеличении размера эта конфигурация плавно трансформируется в более сложную, в которой прослеживаются три вихря типа *curling* (рис. 4б), а приведенные момент и энергия снижаются практически до нуля (рис. 2а). В случае 1б между модой *flower* и конечной конфигурацией, аналогичной той, которая образуется в случае 1а (рис. 4б), наблюдается промежуточная конфигурация с высоким значением приведенной энергии (0.6) и приведенного момента (–0.2) (рис. 2б). При $d_0 = 100$ нм в этом случае мода *flower* трансформируется в некоторую сложную замкнутую конфигурацию, в которой прослеживаются четыре различных вихря типа моды *curling* (рис. 3, рис. 4а), два из которых, начинаясь на плоскостях $(\bar{1}00)$ и (100) соответственно, тянутся к центру зерна, "размываясь" на плоскости (1/2, 0, 0) – один у верхней грани зерна, другой – у нижней. Два других ви-

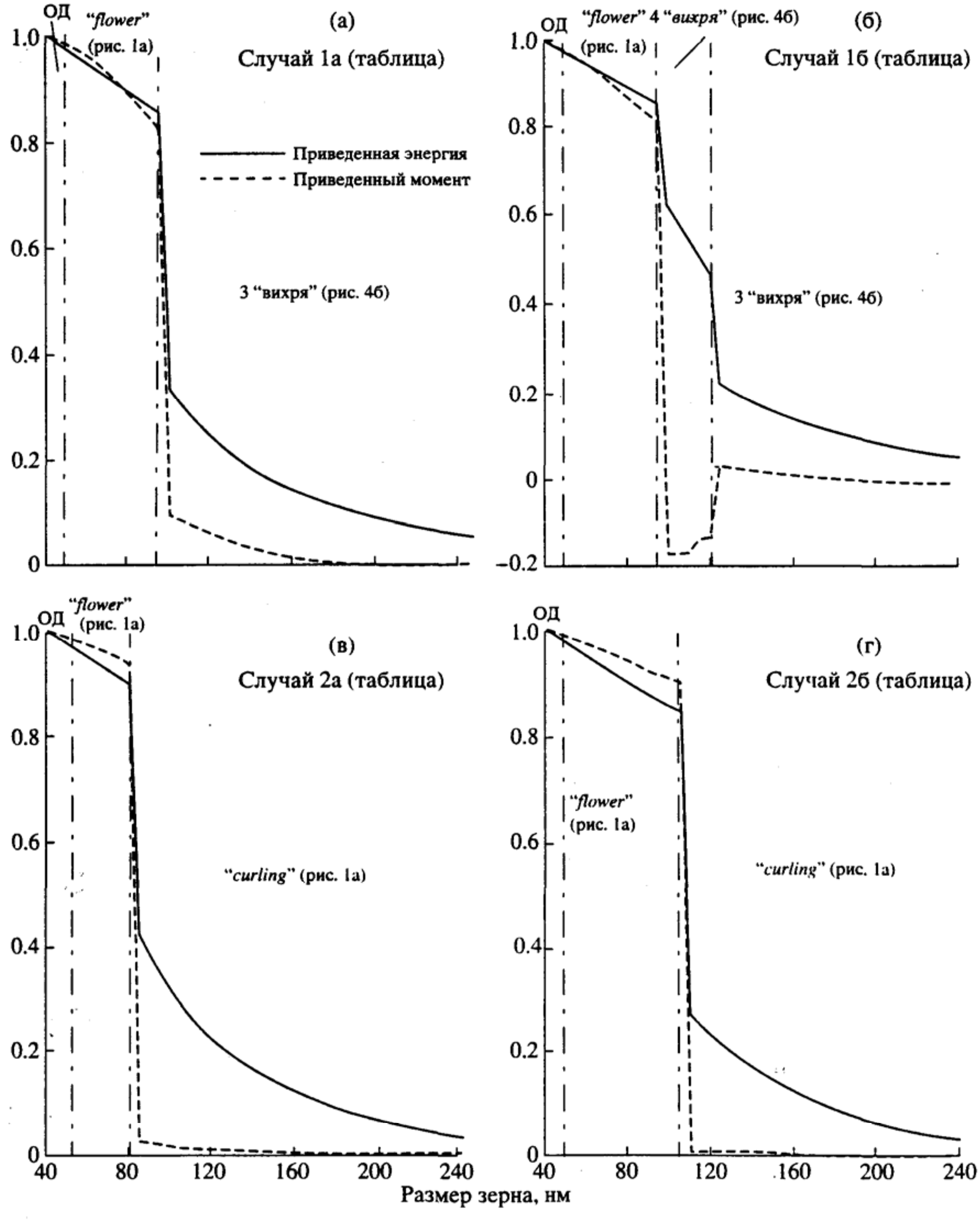

Рис. 2. Приведенная энергия и приведенная проекция магнитного момента на ось z как функции размера кубического зерна магнетита в зависимости от заданного начального распределения вектора намагниченности $\mathbf{I}_s$.

хревых замкнутых потока формируются аналогично вышеописанным вдоль оси y. В центре кубической частицы направление $\mathbf{I}_s$ параллельно диагонали куба [$11\bar{1}$]. При d = 125 нм эта конфигурация скачком переходит в другую, энергетически более выгодную (рис. 4б) с нулевым приведенным магнитным моментом, значение приведенной энергии 0.2, с ростом размера зерна приведенная энергия плавно снижается до нуля. Как можно видеть из рис. 2, энергии полученных метастабильных состояний для всех исследованных случаев несущественно отличаются друг от друга, несмотря на различие фактической конфигурации. Полученная разница в конфигурациях для случаев 1 и 2 объясняется, по-видимому, различием симметрии

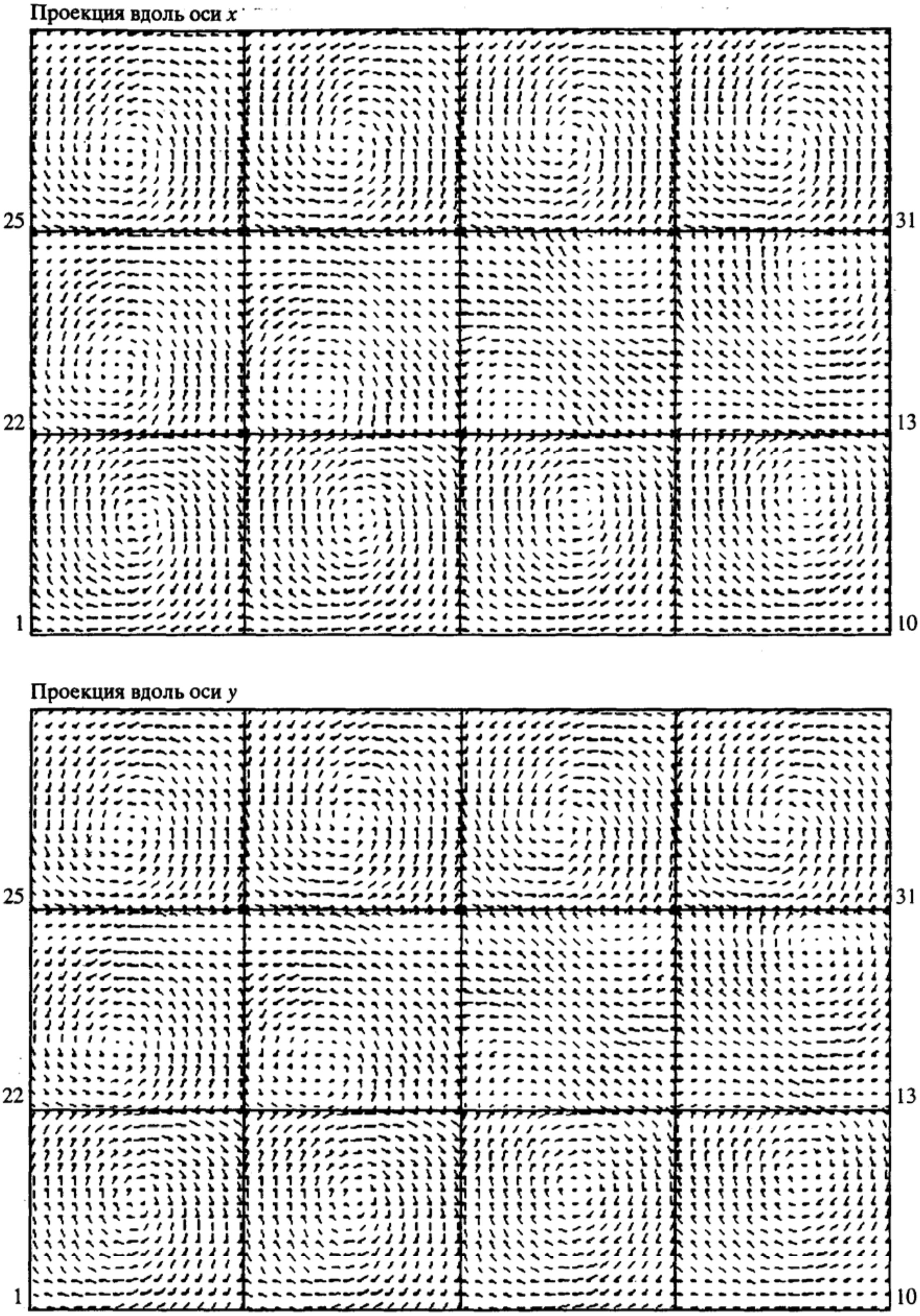

Рис. 3. Диаграммы распределения намагниченности при d_0 = 100 нм, случай 1б (таблица – при исходном ОД состоянии, легкая ось [111] вдоль диагонали куба).

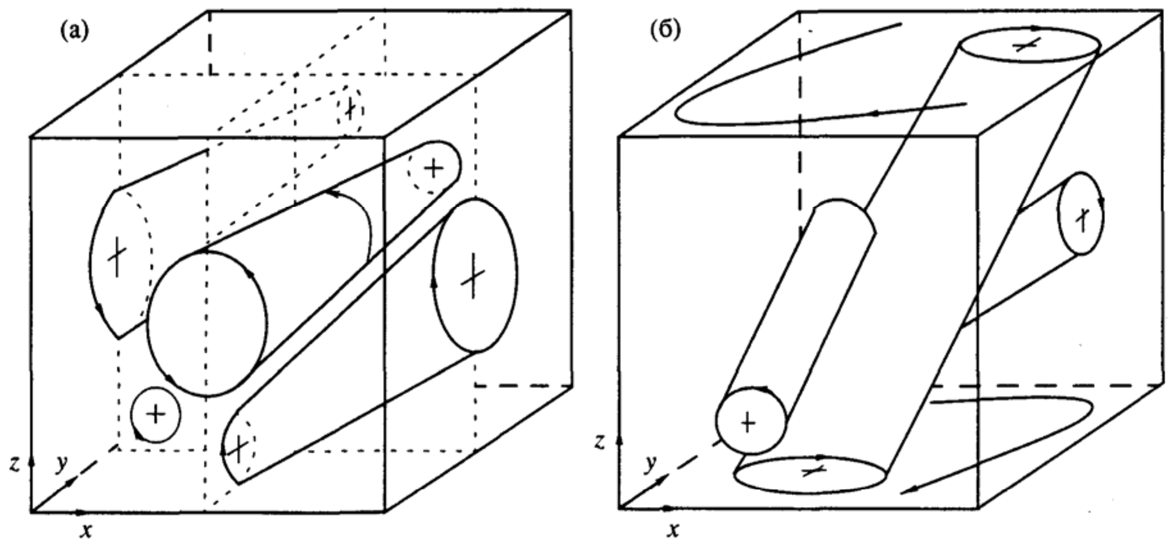

Рис. 4. Возможные типы распределения намагниченности в кубической частице магнетита: (а) – при $d_0 = 100$ нм (случай 1б – таблица); (б) – при $d = 500$ нм (случай 1а, 1б – таблица).

используемых моделей, когда легкая ось [111] в модели для случая 2 параллельна ребру куба, а в модели для случая 1 – диагонали.

Как отмечалось во введении, для частиц эллипсоидальной формы существует строгая оценка критического размера однодоменности [Eisenstein, Aharoni, 1976]:

$$d_0 = 2R = 2\sqrt{\frac{2\pi\times 1.379A}{\frac{\mu_0 I_s^2}{3}-\frac{4}{3}K_1}} = 53.7\ \text{нм}. \qquad (22)$$

Это обстоятельство дает хорошую возможность сопоставления результатов численного и аналитического подходов. Для этого были проведены расчеты ДС частиц магнетита сферической формы (сфера вписана в куб размерностью 31^3 ячеек) (рис. 5а). В силу однородности размагничивающего поля ОД состояние при любых размерах эллипсоидальной частицы является равновесным, так что все первые производные $\partial E_{\text{магн}}/\partial\theta(i, j, k)$ и $\partial E_{\text{магн}}/\partial\varphi(i, j, k)$ равны нулю, а в этом случае метод сопряженных градиентов "не работает": система после первой же итерации остается в ОД состоянии. Поэтому для начала в исходное ОД состояние вносилось малое возмущение в виде моды *curling* [Brown W., 1957] $u_x = -u_\varphi \sin\varphi$, $u_y = u_\varphi\cos\varphi$, где u_x, u_y – возмущения $\mathbf{I}_s$ по осям x и y, соответственно; $u_\varphi = C\cos\theta\sqrt{(\pi/2kr)J_{j+1/2}(kr)}$. Здесь C – малый параметр, $J_{j+1/2}(kr)$ – цилиндрическая функция Бесселя 1 рода, $k = 2.081/R$, R – радиус сферы. Далее, начиная с $d = 40$ нм сравнивались энергии чисто ОД и возмущенного ОД состояний при $C = (0.01–0.1)$. Если энергия возмущенного состояния оказывалась выше энергии чисто ОД состояния, размер d увеличивался, и процедура повторялась. При $d = 53.5$ нм энергия возмущенного состояния оказалась ниже энергии чисто ОД состояния, поэтому здесь была проведена процедура миними-

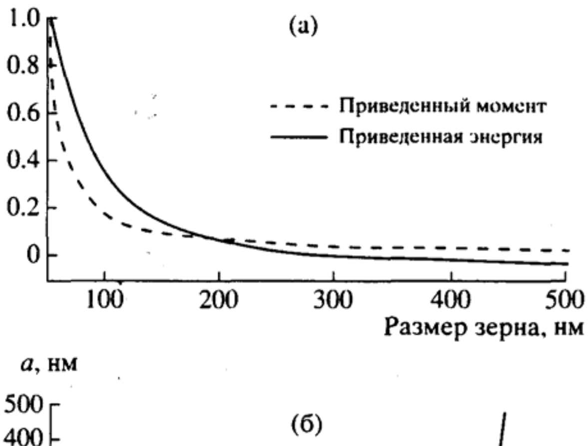

Рис. 5. (а) – приведенная энергия и приведенная проекция магнитного момента на ось z как функции размера зерна магнетита сферической формы, в исходное ОД состояние было внесено возмущение типа "*curling*"; (б) – порог разрушения квазиоднодоменного состояния в частицах магнетита, имеющих форму эллипсоида вращения, в зависимости от соотношения осей эллипсоида ($q = c/a = c/b$, где a, b, c – оси эллипсоида).

зации полной энергии при исходном состоянии, описываемом вышеприведенными формулами. Далее, как обычно, применялся метод сопряженных градиентов, когда равновесное состояние, полученное для частицы предыдущего размера, является исходным состоянием для частицы последующего размера. Как и следовало ожидать в соответствии с предсказаниями аналитических расчетов [Кондорский, 1950; 1952; Brown, 1958; 1962], в этом случае мода *flower,* которая наблюдалась на кубических частицах вследствие неоднородности размагничивающего поля, отсутствует, и ОД конфигурация трансформируется непосредственно в моду *curling.* Полученный нами в результате численных расчетов критический размер однодоменности для частиц сферической формы 53.5 нм находится в отличном согласии с аналитической оценкой (22).

Описываемая процедура была применена также и для анализа условий возникновения моды *curling* в кубических частицах. Оказалось, что в этом случае критический размер однодоменности снизился до 55.5 нм - выше этого размера уже наблюдалась ПОД мода *curling, с* невысоким значением приведенного магнитного момента, энергия которой ниже энергии моды *flower.* Это означает, что при $d > 55.5$ нм мода *flower* является метастабильной - основной модой здесь является мода *curling.* Таким образом, в интервале $d = (55.5\text{-}110)$ нм в кубических частицах могут существовать обе эти моды. Конкретно в каждом случае конфигурация определяется температурной и магнитной предысторией частицы.

Для определения критического размера ОД состояния зерна магнетита от его геометрии были проведены расчеты для частиц, имеющих форму вытянутого эллипсоида вращения, вписанного в прямоугольный параллелепипед, при различных значениях соотношения осей эллипсоида. Результаты'расчетов представлены на рис. 56. Как и следовало ожидать, d_{Kp} растет с ростом степени вытянутости частицы, предельное значение, при котором еще наблюдается переход частицы в неоднородное (ПОД) состояние равно $q = c/a = c/b =$ $= 3.17$, при этом $a = Ь = 360$ нм, с = 1141 нм *(a, Ь, с* - оси эллипсоида). При $q > 3.17$ частица магнетита находится в стабильном ОД состоянии независимо от ее размера.

ВЫВОДЫ

Доменная структура субмикронных зерен магнетита в первую очередь определяется их размером и в меньшей степени - их геометрией. Во всех случаях при размере $d < 50$ нм в них существует только однородная ОД структура.

В частицах магнетита кубической формы при $d = (55.5\text{-}110)$ нм развиваются, по крайней мере, две моды: квазиодно доменная *мода flower* и мода *curling.* Верхний предел области существования моды *flower* составляет 110 нм. Мода *curling* (с некоторыми усложнениями конфигурации) превалирует во всем рассматриваемом интервале $d =$ $= (55.5\text{-}500)$ нм и имеет наименьшую энергию и наибольшую стабильность. Соответственно, мода *flower* почти во всей области ее существования $d = (50\text{-}110)$ нм является метастабильной.

В частицах магнетита, имеющих форму вытянутого эллипсоида вращения, ОД конфигурация трансформируется непосредственно в моду *curling,* минуя моду *flower.* Критический размер этого перехода для сферы составляет 53.5 нм; при соотношении осей эллипсоида, равного 3.17, зерно находится в стабильном ОД состоянии независимо от ее размера.

Проведенные расчеты свидетельствуют о том, что в частицах магнетита субмикронных размеров при превышении ими критического размера однодоменности $d_0 \sim 50$ нм (или критического размера квазиоднодоменности 4> ~ 110 нм) всегда возникает мода *curling* (или комбинация нескольких мод). По-видимому, этот вывод сохранится и при увеличении размера рассматриваемых частиц вплоть до микронных и выше. При этом в силу вихревого характера магнитной конфигурации моды *curling* (рис. 1а) спонтанный магнитный момент в них практически отсутствует. На первый взгляд, этот вывод противоречит экспериментальным данным, согласно которым отношение J_{rs}/J_s. изменяется от 0.4 для $d \sim 100$ нм до 0.1 при $d = (0.8\text{-}1.5)$ мкм [Heider et al., 1987]. Здесь /„ - остаточная намагниченность насыщения. Для объяснения этого противоречия напомним, что микромагнитные расчеты, как правило, проводятся для идеального бездефектного кристалла, в то время как вышеупомянутые эксперименты проведены на зернах, полученных путем дробления поли- или монокристаллов. Такой способ их производства приводит к наличию в них большого количества дефектов разного рода, что, в свою очередь, ведет к резкому возрастанию остаточного магнитного момента даже относительно крупных частиц. В этой связи заметим, что в той же работе [Heider et al., 1987] приведены экспериментальные данные по величине J_{rs}/J_s для гидротермально выращенных зерен магнетита. Отличительными особенностями гидротермально выращенных зерен являются их октаэдрическая огранка и низкая дефектность кристаллической решетки. Оказалось, что в этом случае для зерен размером <200 нм $J_{rs}/J_s \sim 0.1$, а для размера 700 нм $J_{rs}/J_s \sim 0.05$, т.е. суммарный магнитный момент в них практически отсутствует, что согласуется с нашими теоретическими выводами.

Интересно заметить, что более ранние работы по анализу ДС ПОД частиц гораздо лучше соответствовали эксперименту - согласно им ПОД частицы обладали заметным отношением I/J_S ~ (0.1-0.6). При этом использовалась либо модель Амара (домены и стенки в частице, имеющей форму параллелепипеда, представляют собой однородно намагниченные прямоугольные блоки, намагниченность стенок перпендикулярна намагниченности доменов) [Щербаков, 1978; Shcherbakov, Lamash, 1988], либо модель ПОД частицы без априорного разбиения на домены [Moon, Merrill, 1984; 1985; Enkin, Dunlop, 1987], но во всех случаях исследовался только случай одномерного изменения направления вектора намагниченности. Как мы видим теперь, этот приближенный подход оказался несостоятельным: строгий трехмерный микромагнитный анализ показал, что в действительности при превышении частицами критического размера одно- или квазиоднодоменности (мода *flower)* в них всегда возникает только мода *curling* (или комбинация нескольких мод *curling).* Это обстоятельство приводит к серьезной чисто теоретической проблеме: до сих пор ни в одних численных расчетах не удалось получить домены в общепринятом смысле этого слова как области с однородной намагниченностью, разделенные плоскими стенками Блоха, что, как правило, наблюдается на фигурах Биттера-Акулова. Учет наличия дефектов здесь вряд ли поможет, поскольку не видно, почему наличие дислокационных упругих полей приведет к появлению классических плоскопараллельных структур. Возможно, ключом к решению этого парадокса является учет магнитострикционных эффектов, однако, как упоминалось выше, такой анализ пока что не поддается компьютерному моделированию.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 99-05-64879).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

Волков ЕЛ. Численные методы. М.: Наука. 1987. 284 с.

Вонсовский С.В. Магнетизм. М.: Наука. 1971. 1032 с.

Корн Г., Корн Т. Справочник по математике для научных работников и инженеров. М.: Наука. 1968. 720 с.

ЗайманДж. Модели беспорядка. М.: Мир. 1982. 591 с.

Киттелъ Ч. Физическая теория ферромагнитных областей самопроизвольной намагниченности // Физика ферромагнитных областей. М.: ИЛ. 1951. С. 19-116.

Кондорский ЕМ. Однодоменная структура в ферромагнетиках и магнитные свойства мелкодисперсных веществ //Докл. АН СССР. 1950. Т. LXX. № 2. С, 213-218.

Кондорский Е.И. К теории однодоменных частиц // Докл. АН СССР. 1952. Т. LXXXIII. № 3. С. 365-368.

Отнес М., ЭноксонЛ. Прикладной анализ временных рядов. Основные методы. М.: Мир. 1982. 428 с.

Тикадзуми С. Физика ферромагнетизма. Магнитные характеристики и практические применения. М.: Мир. 1987. Т. 2.419 с.

Щербаков В.П. К теории магнитных свойств псевдооднодоменных зерен // Изв. АН СССР. Сер. Физика Земли. 1978. № 5. С. 57-66.

Щербаков В.П.,Ламаш Б.Е., Щербакова В.В. Физические основы магнетизма горных пород. М.: Наука. 1991. 186с.

Aharoni A. Magnetization Curling // Phys. Stat. Sol. 1966. V. 16. P. 3-42.

Berkov D.V.,Ramstock K., Hubert A. Solving micromagnetic problems: Towards an optimal numerical method // Phys. Stat. Sol. A. 1993. V. 137. P. 207-225. *Brown W.F.* Criterion for Uniform Micromagnetization // Phys. Rev. 1957. V. 105. № 5. P. 1479-1483. *Brown W.F.* Rigorous approach to the theory of ferromagnetic microstructure // J. Appl. Phys. 1958. V. 29. P. 470-471. *Brown W.F.* Magnetostatic Principles in Ferromagnetism. Amsterdam: North-Holland Publishing Company. 1962.202 p. *Dunlop DJ.* The Hunting of the "Psark" //J. Geomagn. Geo-electr. 1977. V. 29. P. 293-318.

Eisenstein I., Aharoni A. Magnetization curling in superparamagnetic spheres // Phys. Rev. B. 1976. V. 14. № 5. P. 2078-2090.

Enkin RJ., Dunlop DJ. A micromagnetic study of pseudo-single-domain remanence in magnetite // J. Geophys. Res. 1987. V. 92. P. 12726-12740.

Enkin RJ., Williams W. Three-dimensional micromagnetic analysis of stability in fine magnetic grains // J. Geophys. Res. 1994. V. 99. Bl. P. 611-618.

Fabian K., Kirchner A., Williams W., Heider F., Leibl T., HuberA. Three-dimensional micromagnetic calculations for magnetite using FFT//Geophys. J. Int. 1996. V. 124. P. 89-104. *Ge/'/} C.E., Heider F., Soffel H.C.* Magnetic domain observations on magnetite and titanomaghemite grains (0.5-10 |im) // Geophys. J. Int. 1996. V. 124. P. 75-88. *Halgedahl S., Fuller M.* The dependence of magnetic domain structure upon magnetization state with emphasis upon nucle-ation as a mechanism for pseudo-single-domain behavior // J. Geophys. Res. 1983. V. 88. P. 6505-6522. *Heider F., Dunlop DJ., Sugiura N.* Magnetic properties of hydrothermally recrystalized magnetite crystals // Science. 1987. V. 236. P. 1287-1290.

Moon T.S., Merrill R.T. The magnetic moment of nonuniformly magnetized grains // Phys. Earth Planet. Inter. 1984. V. 34. P. 186-194.

Moon T.S., Merrill R.T. Nucleation theory and domain states in multidomain magnetic material // Phys. Earth Planet. Inter. 1985. V. 37. P. 214-222.

Moskowitz B.M., Banerjee S.K. Grain size limits for pseudo-single-domain behavior in magnetite: implications for paleomagnetism// IEEE Trans. 1979. MAG15. P. 1241-1246. *Ying Dong Yan, Delia Torre E.* Modeling of fine ferromagnetic particles //J. Appl. Phys. 1989. V. 66 (1). P. 320-327. *Rhodes P., Rowland G.* Demagnetizing energies of uniformly magnetized rectangular blocks // Proc. Leeds Philos. Lit. Soc., Sci. Sect. 1954. V. 6. P. 191-210.