

ОРИГИНАЛЬНАЯ СТАТЬЯ

УДК 550.382.3

doi: 10.26907/2542-064X.2023.4.577-589

РАСЧЕТ ПОТЕНЦИАЛЬНЫХ БАРЬЕРОВ И БЛОКИРУЮЩИХ ТЕМПЕРАТУР МАЛЫХ ПСЕВДООДНОДОМЕННЫХ ЧАСТИЦ МЕТОДАМИ МИКРОМАГНЕТИЗМА

В.П. Щербаков, Н.К. Сычева

*Геофизическая обсерватория «Борок» Института физики Земли
им. О.Ю. Шмидта РАН, пос. Борок, 152742, Россия*

Аннотация

Выполнено численное моделирование процесса перемангничивания малых псевдооднодоменных частиц магнетита ($T_c = 580^\circ\text{C}$) цилиндрической формы высотой $h = 60\text{--}350$ нм и отношением высоты к диаметру, равным 1.29. Такая геометрия обеспечивает преимущественную анизотропию формы, так что в стабильном состоянии магнитный момент частицы направлен вдоль оси цилиндра. Показано, что с увеличением размера доменная структура трансформируется от однодоменного состояния (60 нм) к моде *flower* ($h = 70\text{--}85$ нм) и далее к вихревой структуре. Перемангничивание частиц при $h = 75\text{--}250$ нм осуществляется через вихревое состояние с осью, направленной вдоль их диаметра. В диапазоне $h = 300\text{--}350$ нм на вершине потенциального барьера доменная структура преобразуется из единичного вихря в мультивихревое состояние. Блокирующие температуры T_b частиц лежат в диапазоне $520\text{--}580^\circ\text{C}$, при этом зависимость $T_b(h)$ носит немонотонный характер, образуя «яму» при $h = 90\text{--}140$ нм. Для $h = 300\text{--}350$ нм T_b расположены в непосредственной близости от T_c , отличаясь от T_c не более чем на один градус. Установлено, что уже при $h = 100$ нм отношение магнитной энергии во внешнем поле B порядка земного к тепловой энергии при $T = T_b$ достигает единицы, что говорит о сильной нелинейности зависимости термоостаточной намагниченности (TRM) от внешнего поля уже в столь малых полях и при малых размерах частиц. Полученные результаты свидетельствуют о необходимости модификации микромагнитных моделей, применяемых в настоящее время, в сторону учета фактической формы и дефектности кристаллической структуры частиц для приведения их в соответствие со свойствами реальных ферритов, присутствующих в горных породах.

Ключевые слова: микромагнитное моделирование, магнетит, псевдооднодоменные частицы, потенциальный барьер, блокирующая температура.

Введение

Отличительным свойством термоостаточной намагниченности (TRM) является ее высокая интенсивность, приобретаемая в относительно слабом геомагнитном поле. Физический механизм, приводящий к такому поведению однодоменных (ОД) частиц, основан на термофлуктуационной модели преодоления потенциальных барьеров, препятствующих обращению вектора намагниченности. Термофлуктуационная модель TRM предполагает, что выше так называемой температуры блокировки T_b тепловые возбуждения поддерживают положения

термодинамического равновесия допустимых конфигураций, а ниже этой температуры их распределение постепенно замораживается.

Термофлуктуационная модель TRM для ОД частиц позволяет объяснить многие свойства TRM: высокую стабильность, законы независимости и аддитивности парциальных термоостаточных намагниченностей (pTRM) Телье. Для псевдооднодоменных (ПОД) и многодоменных (МД) зерен Neel [1] предположил, что действовавшие физические механизмы могут быть разделены на гистерезисные и термофлуктуационные вклады. Но ни гистерезисная, ни термофлуктуационная теории образования TRM не согласуются с наблюдениями, а также не могут объяснить зависимость интенсивности pTRM от термической предыстории. Подробный разбор достоинств и недостатков гистерезисной и термофлуктуационной моделей дан в работе [2]. Детальная физическая концепция теории TRM для ПОД и МД зерен требует учета переходов между различными доменными структурами (ДС) через энергетические барьеры при охлаждении или нагреве в слабом магнитном поле. Первым шагом в направлении построения физической теории TRM должен быть расчет энергетических барьеров E_b между локальными энергетическими минимумами (LEM), которые представляют различные конфигурации магнитных доменов. Теоретическое решение задачи нахождения пути между двумя заданными состояниями LEM с минимальными энергетическими затратами было предложено в работе [3], содержащей комбинацию метода упругой эластичной ленты и минимизацию свободной энергии (уравнение 1):

$$E = E_{\text{ex}} + E_{\text{an}} + E_{\text{d}}, \quad (1)$$

где обменная энергия

$$E_{\text{ex}} = A(T) \left[(\nabla \alpha_x)^2 + (\nabla \alpha_y)^2 + (\nabla \alpha_z)^2 \right], \quad (2)$$

энергия кристаллографической анизотропии

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

энергия размагничивающего поля

$$E_{\text{d}} = -\frac{1}{2} \mathbf{H}_d \mathbf{a}. \quad (4)$$

Здесь $A(T)$ – обменная константа, $K_1(T)$ – константа анизотропии, T – температура, a_x, a_y, a_z – направляющие косинусы вектора спонтанной намагниченности с осями x, y, z . Внешнее магнитное поле во всех расчетах принималось равным нулю.

Позднее эта схема была численно реализована с использованием программного обеспечения (ПО) с открытым исходным кодом MERRILL [4], версия 1.3.5 (ПО доступно по адресу <https://www.rockmag.org>).

В работе представлены результаты микромагнитного моделирования ДС ПОД идеальных (бездефектных) частиц магнетита цилиндрической формы с высотой h , радиуса r и объема $v = \pi r^2 h$ с целью оценки величины потенциальных барьеров и блокирующих температур в зависимости от температуры T и размера частиц.

1. Методика расчетов

MERRILL поддерживает использование тетраэдрических конечных элементов и вычисление LEM магнитной доменной структуры. Для описания геометрии зерен модель частицы разбивается на тетраэдрические конечные элементы

произвольной формы с помощью дополнительного программного обеспечения с тем расчетом, чтобы полученная сетка была достаточно точной для учета распределения вектора намагниченности по объему частицы. Предельный размер элементарной ячейки ограничен так называемой «длиной обмена» [5]

$$l_{\text{ex}} = \sqrt{2A / (\mu_0 M_s^2)}$$

(μ_0 – магнитная постоянная) и зависит от природы ферромагнетика. Для магнетита при комнатной температуре величина «длины обмена» l_{ex} составляет 9–10 нм. В расчетах размер элементарной ячейки варьировали от 0.5 нм для $h = 60$ нм до 3 нм для $h = 300$ –350 нм. Намагниченность задавали в четырех вершинах каждой из элементарных ячеек и линейно интерполировали во всех других местах. Для поиска LEM в MERRILL используется метод конечных элементов [6]. По умолчанию MERRILL применяет ускоренный адаптивный алгоритм ступенчатого крутого спуска по энергетическому ландшафту, оптимизированный для микромагнетиков [7, 8]. Стандартный метод сопряженных градиентов также доступен.

Численные эксперименты проводили для бездефектных частиц магнетита цилиндрической формы при соотношении $h/2r = 1.29$, с осью цилиндра, вытянутой вдоль оси [001] и легкой осью магнитной анизотропии вдоль направления [111]. При расчетах использовали зависимость магнитных параметров от температуры, принятую в ПО MERRILL согласно [9–11] для обменной константы (Дж/м)

$$A(T) = \frac{(\sqrt{21622.526 + 816.476(T_c - T)} - 147.046)}{408.238 \times 10^{11}},$$

константы анизотропии (Дж/м³)

$$K_1(T) = -2.13074 \times 10^{-5} \times (T_c - T)^{3.2}$$

и намагниченности насыщения (А/м)

$$M_s(T) = 737.384 \times 51.876 \times (T_c - T)^{0.4}$$

где температура Кюри $T_c = 580$ °С [4]. Перед расчетом энергетических барьеров средствами MERRILL вычисляли LEM для заданной температуры путем минимизации E при начальном состоянии магнитных моментов элементарных ячеек вдоль легкой оси [111], на которые накладывались небольшие случайные возмущения. Полученная ДС была стартовым состоянием для расчета энергетических барьеров, конечное состояние – инверсия стартового состояния.

2. Результаты

Проведены расчеты потенциальных барьеров E_b , блокирующих температур T_b , магнитных моментов и получены ДС для частиц от $h = 60$ до 350 нм при температурах T от 20 до 575 °С. Величину потенциального барьера E_b определяли как разность энергии метастабильного стартового состояния и энергии наивысшей точки, ведущей в другое метастабильное (антипараллельное стартовому) состояние. Для $h = 60$ нм в течение всего процесса перемагничивания ДС неотличима от однодоменной (SD), поэтому перейдем сразу к описанию траектории перехода между антипараллельными структурами $flower+ \rightarrow flower-$ ($h = 70$ –85 нм), $SV+ \rightarrow SV-$ ($h = 90$ –350 нм). Аббревиатурой SV (*single vortex*) обозначена вих-

ревая структура с одним вихрем, «+» – стартовая структура, «–» – структура, антипараллельная стартовой. Необходимо отметить, что, поскольку частицы имеют вытянутую форму, в полученных в качестве стартовых структурах LEM вектор намагниченности $\mathbf{M}$ направлен вдоль длинной оси [001] для SD и $flower$, а в структурах SV вдоль длинной оси [001] направлены (с возможным небольшим отклонением) как ось вихря, так и $\mathbf{M}$.

Для $h = 70$ нм переход от $flower+$ к $flower-$ происходит через структуру $flower_0$, где $flower_0$ означает структуру $flower$ с осью вдоль короткой оси (рис. 1). При росте размера, для $h = 75$ – 85 нм преодоление барьера происходит уже с образованием не $flower$, но вихря вдоль короткой оси: $flower+ \rightarrow SV_0 \rightarrow flower-$ (рис. 1).

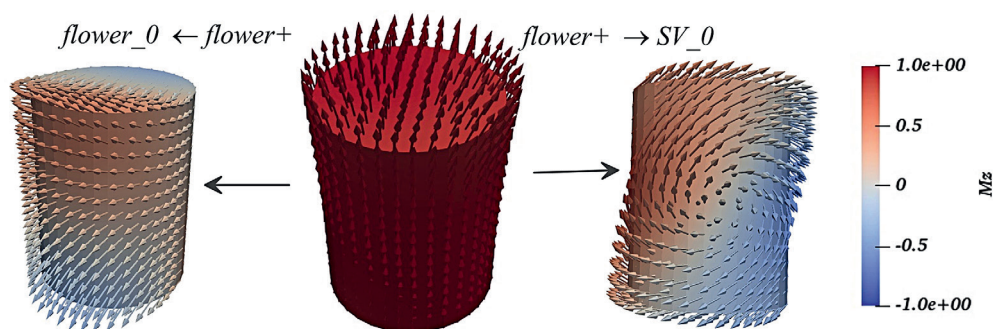


Рис. 1. Пример переходов $flower+ \rightarrow flower_0$ ($h = 70$ нм) и $flower+ \rightarrow SV_0$ ($h = 75$ нм). Цветовая шкала соответствует величине проекции вектора намагниченности на ось z

На рис. 2, *a* и *б* показано изменение энергии $E(i)$ и компонент вектора $\mathbf{M}(i)$ при $T = 0$ °C в процессе оптимального перехода для $h = 70$ и 100 нм. На этом и всех последующих рисунках i означает номер шага при последовательном расчете траектории ДС. Для размеров 90 – 100 нм в качестве стартовой структуры ($T = 20$ °C) получен $vortex$ с высоким значением проекции вектора намагниченности на ось [001] $M_z \approx 0.8$, (обозначим такую структуру аббревиатурой « SV », «слабый» $vortex$). Для $h = 90$ нм при повышении T до 150 °C в качестве стартового LEM получен $flower$. Такая стартовая ДС сохраняется вплоть до $T = 575$ °C. Для других размеров этого диапазона стартовая ДС $flower$ получена для более высоких температур.

Для локализации положения оси $vortex$ удобно ввести спиральность $H = \mathbf{M} \times \text{rot} \mathbf{M}$ [4, 12], величина которой растет с ростом закрутки (ротора) вектора $\mathbf{M}$, что как раз и происходит при приближении к оси $vortex$ (рис. 3). Последовательность изменений плотности параметра спиральности H наглядно демонстрирует, что перемангничивание при $h = 90$ – 115 нм происходит путем разворота оси $vortex$.

В интервале размеров $h = 120$ – 250 нм переход для антипараллельных структур осуществляется по схеме $SV+ \rightarrow SV_0 \rightarrow SV-$ по всему температурному интервалу. Пример такого перехода показан на рис. 4 для размера $h = 200$ нм при $T = 20$ °C. Естественно, начальная намагниченность здесь становится заметно ниже, $M_z \approx 0.1$ – 0.2 , а переворот осуществляется через изгиб первоначально вертикальной оси $vortex$ с последующим образованием конфигурации SV_0 .

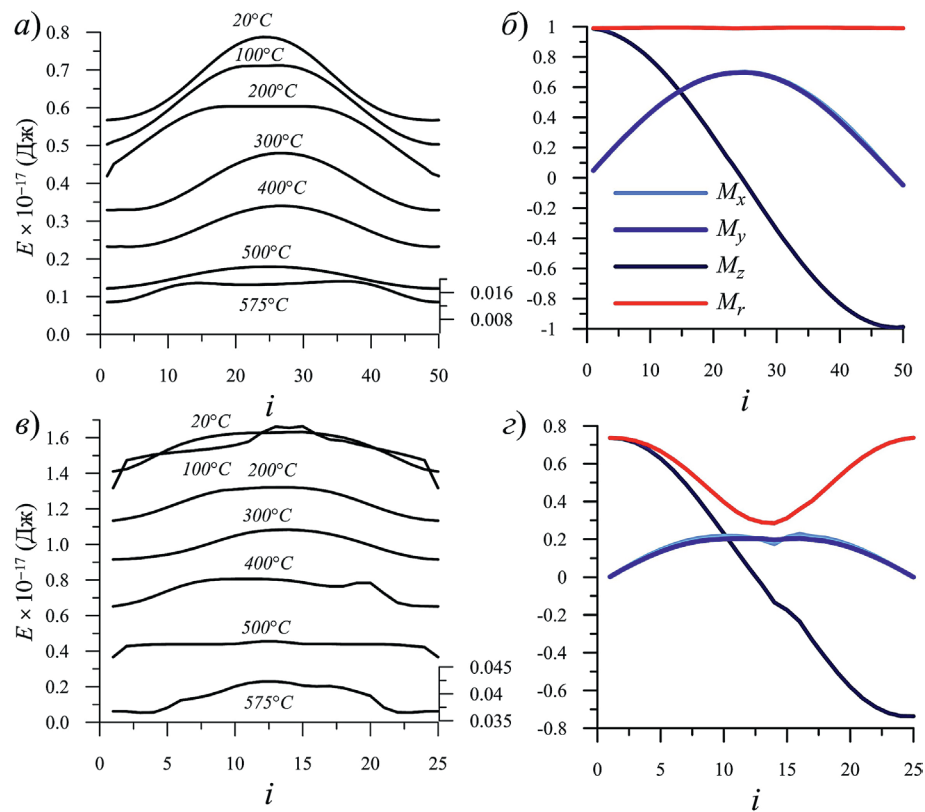


Рис. 2. Кривые изменения энергии $E(i)$ (а, в) и изменение компонент вектора $\mathbf{M}(i)$ при $T = 20^\circ\text{C}$ (б, з) в процессе оптимального перехода $flower+ \rightarrow flower-$ для $h = 70$ нм (а и б) и $h = 100$ нм (в и з), i – номер шага при последовательном расчете траектории ДС

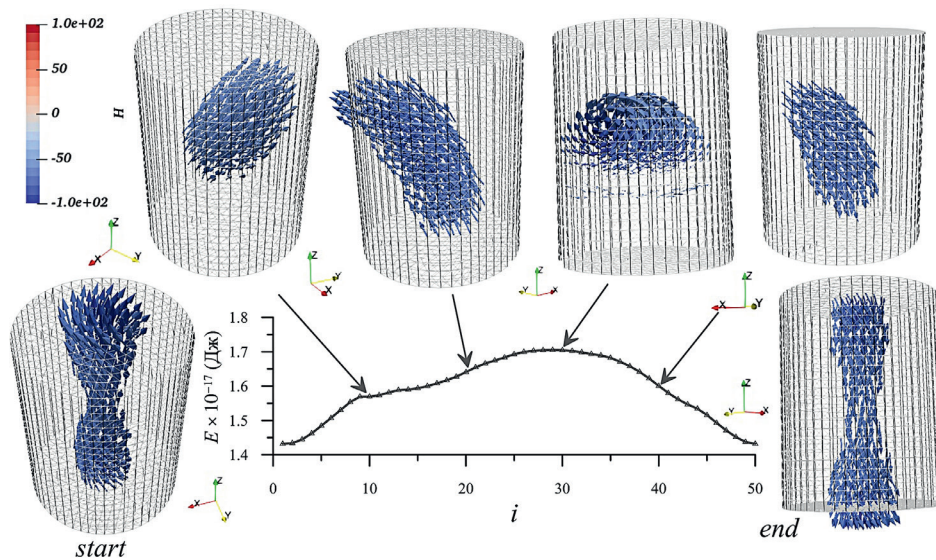


Рис. 3. $h = 100$ нм, $T = 20^\circ\text{C}$. В центре – график изменения энергии $E(i)$ в процессе оптимального перехода $SV+ \rightarrow SV-$. На рисунках вокруг графика показано распределение вектора намагниченности в области с высокой спиральностью $\mathbf{H} = \mathbf{M} \times \text{rot} \mathbf{M}$ в интервале условных единиц (от -100 до -60) (цветовая шкала)

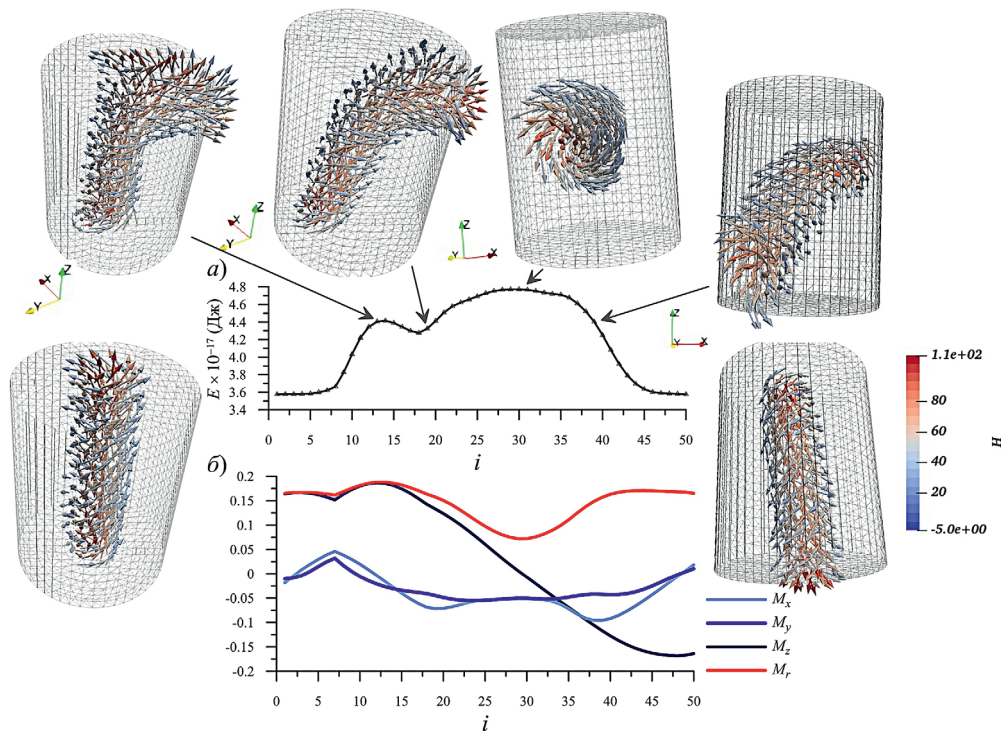


Рис. 4. $h = 200$ нм, $T = 20$ °С. а) График изменения $E(i)$ в процессе оптимального перехода $SV+ \rightarrow SV-$. На рисунках вокруг графика показано распределение вектора намагниченности в области с высокой спиральностью $H = \mathbf{M} \times \text{rot} \mathbf{M}$ в интервале условных единиц 40–110 (цветовая шкала); б) изменение компонент $\mathbf{M}(i)$ в процессе перехода

Для частиц с размерами $h = 300$ – 350 нм перемагничивание также начинается с изгиба первоначального квазивертикального вихря. На вершине потенциального барьера ДС образует уже мультивихревую структуру (MV), конфигурация которой зависит от температуры (рис. 5).

3. Обсуждение

На рис. 6 представлена обобщенная диаграмма траекторий переходов $flower(SD)+ \rightarrow flower(SD)-$, $wSV+ \rightarrow wSV-$ и $SV+ \rightarrow SV-$ от температуры и объема частицы h по результатам моделирования. Конкретные детали этих переходов были описаны выше, пунктирная линия на уровне 350 нм показывает предельное значение размера частиц, рассчитанное в данной работе.

На рис. 7, а приведена зависимость величины потенциального барьера E_b от температуры T для размеров $h = 70, 100, 200, 300$ нм. Для сравнения пунктиром представлена величина E_b для гипотетической ситуации, если бы магнитная конфигурация при всех размерах оставалась ОД. В этом случае (при преобладающей анизотропии формы) высоту потенциального барьера можно представить в виде уравнения 5 [13]:

$$E_b(T) = \frac{1}{2} \mu_0 N_d M_s^2(T) v, \quad (5)$$

где N_d – размагничивающий фактор.

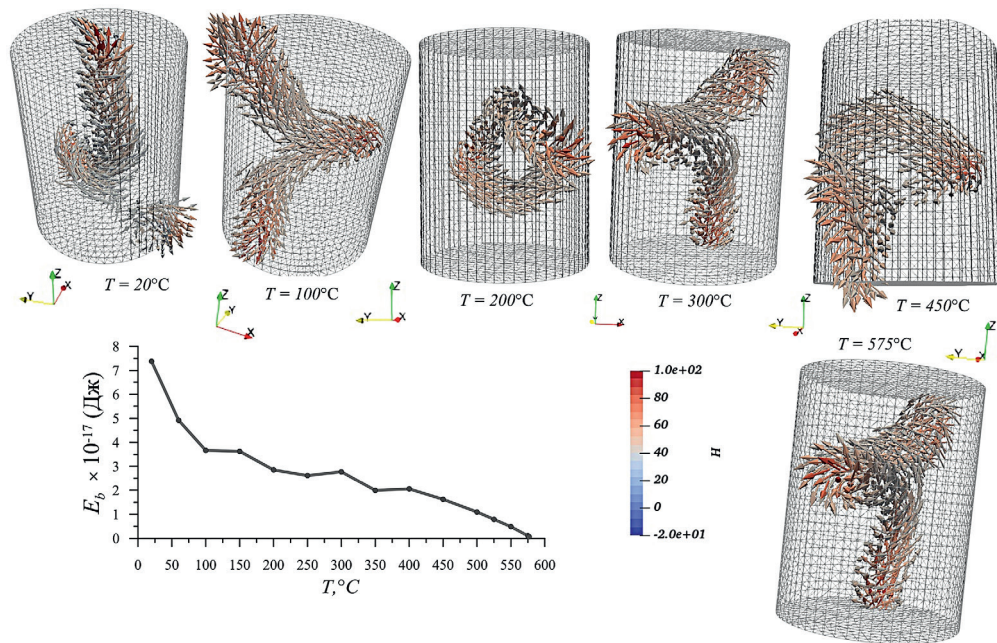


Рис. 5. $h = 300$ нм, зависимость высоты потенциального барьера E_b от температуры T и распределение магнитных моментов в области частицы с максимальной величиной спинальности H (35–100) для $T = 20$ – 575°C

Для цилиндра с соотношением осей $h/2r = 1.29$ $N_d \approx 0.08$ [14], где $N_d = N_l - N_s$, $N_l \approx 0.39$ – размагничивающий фактор вдоль оси цилиндра, а $N_s \approx 0.31$ – это размагничивающий фактор вдоль диаметра цилиндра. Как видно, ОД приближение хорошо отображает поведение $E_b(T)$ при $h = 70$ нм, что ожидаемо, поскольку магнитная конфигурация при столь малом размере практически неотличима от ОД (небольшое различие в форме кривых $E_b(T)$ связано с тем, что уравнение (5) не учитывает вклада обменной энергии и энергии магнитной анизотропии. Однако, уже при $h = 100$ нм ОД это приближение дает ошибку в 100% (при $T < 300^\circ\text{C}$), а при увеличении h оно становится и вовсе неприменимым.

Блокирующая температура T_b определяется как температура, при которой время релаксации становится сравнимым с временем опыта, а при $T < T_b$ магнитный момент уже стабилен во времени. Такое «замораживание» магнитных моментов частиц и есть процесс образования термоостаточной намагниченности. Простая, но достаточно точная оценка T_b исходит из уравнения 6 [13, 15]:

$$kT_b \approx E_b / 25. \quad (6)$$

Соответственно, T_b определялась как точка пересечения графиков $E_b(T)$ и графика $E_b = 25kT$ (пример представлен на рис. 7, а).

Рис. 7, б демонстрирует рост отношения магнитной энергии $M_r M_s(T) \nu B$ во внешнем поле B порядка земного к тепловой энергии при $T = T_b$ с ростом размера h . Как видно, это отношение достигает 1 при $h = 100$ нм, что говорит о сильной нелинейности зависимости $\text{TRM}(B)$ уже в столь малых полях и малых размерах частиц.

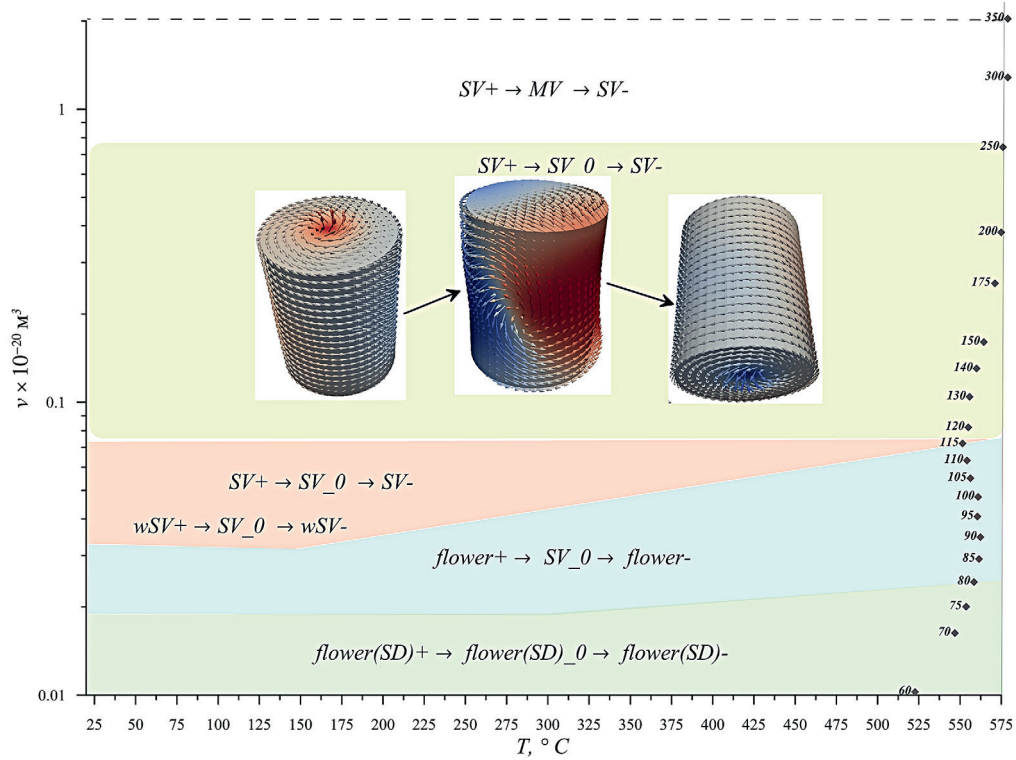


Рис. 6. Зависимость траектории переходов $flower(SD)+ \rightarrow flower(SD)-$, $wSV+ \rightarrow wSV-$ и $SV+ \rightarrow SV-$ от температуры и объема частицы h по результатам моделирования. Ромбами отмечено значение блокирующей температуры, метки у ромбов означают размер частицы h в нм

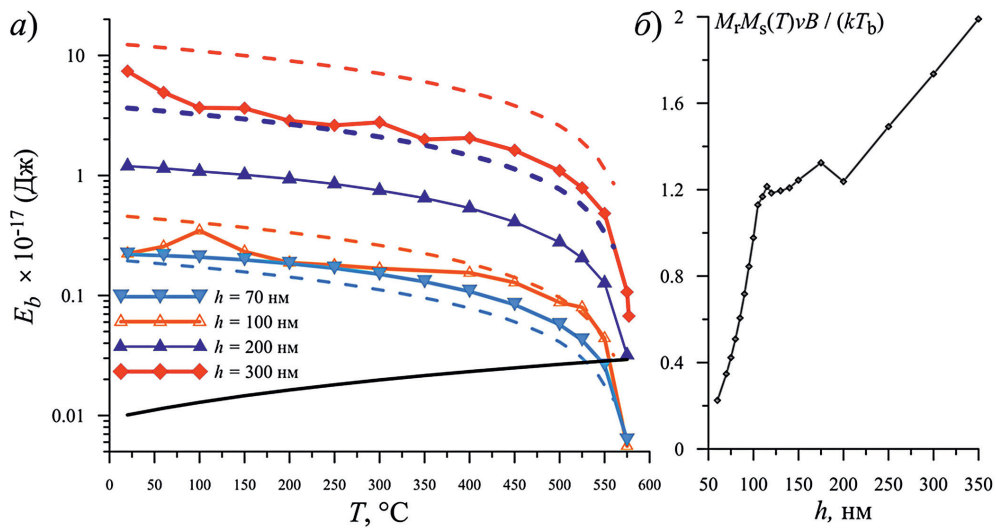


Рис. 7. а) Зависимость высоты потенциального барьера E_b от температуры T для $h = 70, 100, 200, 300$ нм, пунктирными линиями показана высота потенциального барьера, рассчитанная по формуле (5); б) зависимость $M_r M_s(T) v B / (k T_b)$ от размера частицы h , внешнее поле $B = 50$ мкТл

На рис. 8, *a* представлена полученная по результатам расчетов зависимость блокирующей температуры от объема магнетитовых частиц цилиндрической формы, пунктиром выделен интервал размеров частиц 85–115 нм переходной зоны *flower* → *SV*, так называемая зона магнитно-нестабильных частиц [12], где в нашем случае наблюдается снижение блокирующей температуры относительно T_b более мелких зерен. Нестабильность этой зоны определяется тем, что в ней, как уже отмечено выше, в зависимости от температуры и размера частицы преодоление барьера может происходить по схемам *flower*+ → *SV*_0 → *flower*-, *wSV*+ → *SV*_0 → *wSV*-, *SV*+ → *SV*_0 → *SV*-.

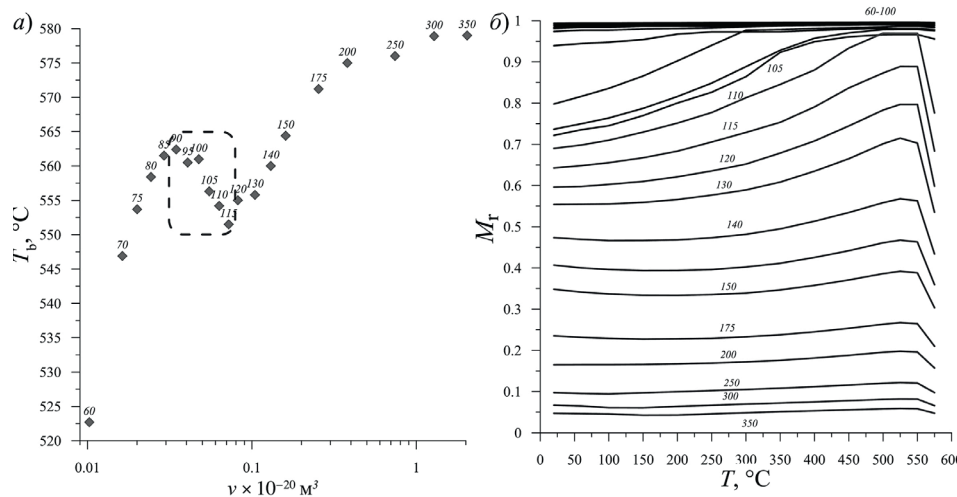


Рис. 8. *a*) Зависимость блокирующей температуры от объема магнетитовых частиц цилиндрической формы по результатам расчетов, метки у ромбов означают высоту цилиндра в нм; *б*) зависимость остаточного магнитного момента частицы от температуры (начальное состояние, *SD*+, *flower*+, *wSV*+ или *SV*+) для разных размеров частиц (цифры у линий означают высоту цилиндра в нм)

Для частиц размерами $h = 250$ – 350 нм значения T_b , полученные вышеописанным способом, находятся в непосредственной близости от T_c (для $h = 250$ нм $T_b = 576$ °C, для $h = 300$ нм $T_b = 578.9$ °C, $h = 350$ нм $T_b = 579$ °C). Рис. 8, *б* демонстрирует зависимость относительного полного магнитного момента M_r частицы от ее размера и температуры. Как видно из рисунка, M_r довольно слабо зависит от температуры, величина же его постепенно снижается от 1 до 0.05 при росте h от 60 до 350 нм.

Заключение

По результатам расчета ДС структуры малых ПОД частиц магнетита цилиндрической формы с отношением высоты h к диаметру, равным 1.29, установлено, что для $h = 60$ нм в силу преимущественной анизотропии формы в стабильном состоянии магнитный момент частицы направлен вдоль оси цилиндра, при $h = 70$ – 85 нм образуется мода *flower*, а в диапазоне $h = 90$ – 350 нм – вихревая структура. Рассчитан потенциальный барьер между двумя противоположными направлениями магнитных моментов. На основе этих расчетов оценены блокирующие температуры частиц и показано, что зависимость $T_b(h)$ носит немонотонный характер. Рассчитанное отношение магнитной энергии частиц

размером выше 120 нм во внешнем поле $B = 50$ мкТл к тепловой энергии при $T = T_b$ указывает на сильную нелинейность зависимости $\text{TRM}(B)$.

Полученные результаты в значительной мере расходятся с известными экспериментальными данными, свидетельствующими о достаточно широком спектре блокирующих температур и линейности зависимости $\text{TRM}(B)$ в горных породах. Такие противоречия говорят о несовершенстве применяемых микромагнитных моделей и необходимости их модификации. В частности, для получения результатов, согласующихся со свойствами природных ферритмагнетиков, необходимо учитывать форму и дефекты кристаллической структуры частиц, а также магнитостатическое взаимодействие и химическую неоднородность природного магнетита.

Благодарности. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 23-17-00112, <http://rscf.ru/project/23-17-00112/> (ВППЦ) и Госпрограммы ГО «Борок» ИФЗ РАН (НКС).

Литература

1. Néel L. Some theoretical aspects of rock-magnetism // *Adv. Phys.* 1955. V. 4, No 14. P. 191–243. <https://doi.org/10.1080/00018735500101204>.
2. Shcherbakov V.P., Shcherbakova V.V. On suitability of the Thellier method of paleointensity determinations to pseudosingledomain and multidomain grains // *Geophys. J. Int.* 2001. V. 146, No 1. P. 20–30. <https://doi.org/10.1046/j.0956-540x.2001.01421.x>.
3. Fabian K., Shcherbakov V.P. Energy barriers in three-dimensional micromagnetic models and the physics of thermoviscous magnetization // *Geophys. J. Int.* 2018. V. 215, No 1. P. 314–324. <https://doi.org/10.1093/gji/ggy285>.
4. Ó Conbhuí P., Williams W., Fabian K., Ridley P., Nagy L., Muxworthy A.R. MERRILL: Micromagnetic earth related robust interpreted language laboratory // *Geochem. Geophys., Geosyst.* 2018. V. 19, No 4. P. 1080–1106. <https://doi.org/10.1002/2017GC007279>.
5. Rave W., Fabian K., Hubert A. Magnetic states of small cubic particles with uniaxial anisotropy // *J. Magn. Magn. Mater.* 1998. V. 190, No 3. P. 332–348. [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(98\)00328-X](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(98)00328-X).
6. Davies A.J. *The Finite Element Method: An Introduction with Partial Differential Equations*. 2nd ed. Cary: Oxford Univ. Press, 2011. 320 p.
7. Berkov D. Numerical calculation of the energy barrier distribution in disordered many-particle systems: The path integral method // *J. Magn. Magn. Mater.* 1998. V. 186, No 1–2. P. 199–213. [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(98\)00078-X](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(98)00078-X).
8. Berkov D. Evaluation of the energy barrier distribution in many-particle systems using the path integral approach // *J. Phys.: Condens. Matter.* 1998. V. 10, No 5. P. L89–L95. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/10/5/002>.
9. Heider F., Williams W. Note on temperature dependence of exchange constant in magnetite // *Geophys. Res. Lett.* 1988. V. 15, No 2. P. 184–187. <https://doi.org/10.1029/GL015i002p00184>.
10. Fletcher E.J., O'Reilly W. Contribution of Fe^{2+} ions to the magnetocrystalline anisotropy constant K_1 of $\text{Fe}_{3-x}\text{Ti}_x\text{O}_4$ ($0 < x < 0.1$) // *J. Phys. C: Solid State Phys.* 1974. V. 7, No 1. P. 171–178. <https://doi.org/10.1088/0022-3719/7/1/024>.
11. Heider F., Dunlop D.J., Sugiura N. Magnetic properties of hydrothermally recrystallized magnetite crystals // *Science*. 1987. V. 236, No 4806. P. 1287–1290. <https://doi.org/10.1126/science.236.4806.1287>.

12. Wang Y., Ge K., Williams W., Zhou H., Wang H., Nagy L., Tauxe L., Wang J., Liu S., Liu Y. Micromagnetic modeling of a magnetically unstable zone and its geological significances // J. Geophys. Res.: Solid Earth. 2022. V. 127, No 9. Art. e2022JB024876. <https://doi.org/10.1029/2022JB024876>.
13. *Нагата Т.* Магнетизм горных пород. М.: Мир, 1965. 348 с.
14. Prozorov R., Kogan V.G. Effective demagnetizing factors of diamagnetic samples of various shapes // Phys. Rev. Appl. 2018. V. 10, No 1. Art. 014030. <https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.10.014030>.
15. Shcherbakov V.P., Lhuillier F., Sycheva N.K. Exact analytical solutions for kinetic equations describing thermochemical remanence acquisition for single-domain grains: Implications for absolute paleointensity determinations // J. Geophys. Res.: Solid Earth. 2021. V. 126, No 5. Art. e2020JB021536. <https://doi.org/10.1029/2020JB021536>.

Поступила в редакцию 17.10.2023

Принята к публикации 25.11.2023

Щербаков Валерий Прохорович, доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник, руководитель лаборатории палеомагнетизма и физико-химических свойств горных пород

Геофизическая обсерватория «Борок» – филиал Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института физики Земли им. О.Ю. Шмидта Российской академии наук

пос. Борок, д. 142, Некоузский район, Ярославская область, 152742, Россия

E-mail: shcherbakovv@list.ru

Сычева Наталия Константиновна, кандидат физико-математических наук, заместитель директора, старший научный сотрудник лаборатории палеомагнетизма и физико-химических свойств горных пород

Геофизическая обсерватория «Борок» – филиал Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института физики Земли им. О.Ю. Шмидта Российской академии наук

пос. Борок, д. 142, Некоузский район, Ярославская область, 152742, Россия

E-mail: sycheva@borok.yar.ru

ISSN 2542-064X (Print)

ISSN 2500-218X (Online)

UCHENYE ZAPISKI KAZANSKOGO UNIVERSITETA. SERIYA ESTESTVENNYE NAUKI

(Proceedings of Kazan University. Natural Sciences Series)

2023, vol. 165, no. 4, pp. 577–589

ORIGINAL ARTICLE

doi: 10.26907/2542-064X.2023.4.577-589

Calculation of Potential Barriers and Blocking Temperatures of Small Pseudo–Single-Domain Particles by Micromagnetism Methods

V.P. Shcherbakov *, N.K. Sycheva **

*Borok Geophysical Observatory, Schmidt Institute of Physics of the Earth,
Russian Academy of Sciences, Borok, 152742 Russia*

E-mail: *shcherbakovv@list.ru, **sycheva@borok.yar.ru

Received September 21, 2023; Accepted October 25, 2023

Abstract

Numerical simulation of the process of remagnetization of small pseudo–single-domain magnetite particles ($T_c = 580^\circ\text{C}$) was performed. The particles are cylindrical in shape, with a height h of 60–350 nm

and a height-to-diameter ratio of 1.29. This geometry enables preferential anisotropy of the shape, causing the magnetic moment of the particle to align along the cylinder's axis in a stable state. As the size increases, the domain structure shifts from the single-domain state (60 nm) to the *flower* mode ($h = 70\text{--}85$ nm), and then to a *vortex* structure. Particles in the range of $h = 75\text{--}250$ nm are remagnetized through a *vortex* state, with the axis aligned along their diameter. In the range of $h = 300\text{--}350$ nm, at the top of the potential barrier, the domain structure transforms from a single *vortex* to a *multi-vortex* configuration. The blocking temperatures T_b of the particles vary from 520 to 580°C, while the dependence $T_b(h)$ is non-monotonic and manifests a "pit" at $h = 90\text{--}140$ nm. At the same time, at $h = 300\text{--}350$ nm, T_b values differ from T_c by no more than 1°C. At $h = 100$ nm, the ratio of magnetic energy in the external field B of the order of the earth to thermal energy at $T = T_b$ reaches 1. This suggests a strong nonlinearity of the TRM(B) dependence even in such small fields and particle sizes. The results obtained highlight the need to revise the existing micromagnetic models by taking into account the specific shape and deficiency of the crystal structure of particles in order to bring them in line with the properties of actual ferrimagnets present in rocks.

Keywords: micromagnetic modeling, magnetite, pseudodomain particles, potential barrier, blocking temperature

Acknowledgements. This study was supported by the Russian Science Foundation (project no. 23-17-00112, <http://rscf.ru/project/23-17-00112/> (VPS)) and the State Program for the Borok Geophysical Observatory, Schmidt Institute of Physics of the Earth, Russian Academy of Sciences (NKS).

Figure Captions

- Fig. 1. Example of the transitions $flower+ \rightarrow flower_0$ ($h = 70$ nm) and $flower+ \rightarrow SV_0$ ($h = 75$ nm). The color scale corresponds to the magnitude of the magnetization projection on the z axis.
- Fig. 2. Energy trajectories $E(i)$ (a, c) and the components of the vector $\mathbf{M}(i)$ at $T = 20^\circ\text{C}$ (b, d) during the optimal transition $flower+ \rightarrow flower-$ for $h = 70$ nm (a and b) and $h = 100$ nm (c and d), i is the step number for the sequential calculation of the DS trajectory.
- Fig. 3. $h = 100$ nm, $T = 20^\circ\text{C}$. The graph in the center displays the $E(i)$ curves during the optimal transition $SV+ \rightarrow SV-$. The figures around the graph show the distribution of the magnetization vector in the region with high helicity $H = \mathbf{M} \times \text{rot} \mathbf{M}$ in the range of conventional units (from -100 to -60) (color scale).
- Fig. 4. $h = 200$ nm, $T = 20^\circ\text{C}$. a) Graph of the energy change $E(i)$ during the optimal transition $SV+ \rightarrow SV-$. The figures around the graph show the distribution of the magnetization vector in the region with high helicity $H = \mathbf{M} \times \text{rot} \mathbf{M}$ in the interval of conventional units $40\text{--}110$ (color scale); b) the variations of the $\mathbf{M}(i)$ components during the transition.
- Fig. 5. $h = 300$ nm, the dependence of the height of the potential barrier E_b on the temperature T and the distribution of magnetic moments in the region of the particle with the maximum helicity value H ($35\text{--}100$) for $T = 20\text{--}575^\circ\text{C}$.
- Fig. 6. Dependence of the transition path $flower(SD)+ \rightarrow flower(SD)-$, $wSV+ \rightarrow wSV-$, and $SV+ \rightarrow SV-$ on the temperature and volume of the particle h according to the simulation results. The diamonds indicate the value of the blocking temperature, the marks next to the diamonds show the particle size h , nm.
- Fig. 7. a) Dependence of the height of the potential barrier E_b on the temperature T for $h = 70, 100, 200$, and 300 nm, the dashed lines show the height of the potential barrier calculated by formula (5); b) dependence $M_r M_s(T) v B / (k T_b)$ on the height of the cylindrical particle h , the external field $B = 50 \mu\text{T}$.
- Fig. 8. a) Dependence of the blocking temperature on the volume of cylindrical magnetite particles according to the results of calculations, the marks next to the diamonds show the height of the cylinder, nm; b) dependence of the residual magnetic moment of the particle on the temperature (initial state, $SD+$, $flower+$, $wSV+$, or $SV+$) for different particle sizes (the numbers above the lines indicate the cylinder height, nm).

References

1. Néel L. Some theoretical aspects of rock-magnetism. *Adv. Phys.*, 1955, vol. 4, no. 14, pp. 191–243. <https://doi.org/10.1080/00018735500101204>.

2. Shcherbakov V.P., Shcherbakova V.V. On suitability of the Thellier method of paleointensity determinations to pseudosingledomain and multidomain grains. *Geophys. J. Int.*, 2001, vol. 146, no. 1, pp. 20–30. <https://doi.org/10.1046/j.0956-540x.2001.01421.x>.
3. Fabian K., Shcherbakov V.P. Energy barriers in three-dimensional micromagnetic models and the physics of thermoviscous magnetization. *Geophys. J. Int.*, 2018, vol. 215, no. 1, pp. 314–324. <https://doi.org/10.1093/gji/ggy285>.
4. Ó Conbhuí P., Williams W., Fabian K., Ridley P., Nagy L., Muxworthy A.R. MERRILL: Micromagnetic earth related robust interpreted language laboratory. *Geochem. Geophys., Geosyst.*, 2018, vol. 19, no. 4, pp. 1080–1106. <https://doi.org/10.1002/2017GC007279>.
5. Rave W., Fabian K., Hubert A. Magnetic states of small cubic particles with uniaxial anisotropy. *J. Magn. Magn. Mater.*, 1998, vol. 190, no. 3, pp. 332–348. [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(98\)00328-X](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(98)00328-X).
6. Davies A.J. *The Finite Element Method: An Introduction with Partial Differential Equations*. 2nd ed. Cary, NC, Oxford University Press, 2011. 320 p.
7. Berkov D. Numerical calculation of the energy barrier distribution in disordered many-particle systems: The path integral method. *J. Magn. Magn. Mater.*, 1998, vol. 186, nos. 1–2, pp. 199–213. [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(98\)00078-X](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(98)00078-X).
8. Berkov D. Evaluation of the energy barrier distribution in many-particle systems using the path integral approach. *J. Phys.: Condens. Matter*, 1998, vol. 10, no. 5, pp. L89–L95. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/10/5/002>.
9. Heider F., Williams W. Note on temperature dependence of exchange constant in magnetite. *Geophys. Res. Lett.*, 1988, vol. 15, no. 2, pp. 184–187. <https://doi.org/10.1029/GL015i002p00184>.
10. Fletcher E.J., O'Reilly W. Contribution of Fe^{2+} ions to the magnetocrystalline anisotropy constant K_1 of $\text{Fe}_{3-x}\text{Ti}_x\text{O}_4$ ($0 < x < 0.1$). *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 1974, vol. 7, no. 1, pp. 171–178. <https://doi.org/10.1088/0022-3719/7/1/024>.
11. Heider F., Dunlop D.J., Sugiura N. Magnetic properties of hydrothermally recrystallized magnetite crystals. *Science*, 1987, vol. 236, no. 4806, pp. 1287–1290. <https://doi.org/10.1126/science.236.4806.1287>.
12. Wang Y., Ge K., Williams W., Zhou H., Wang H., Nagy L., Tauxe L., Wang J., Liu S., Liu Y. Micromagnetic modeling of a magnetically unstable zone and its geological significances. *J. Geophys. Res.: Solid Earth*, 2022, vol. 127, no. 9, art. e2022JB024876. <https://doi.org/10.1029/2022JB024876>.
13. Nagata T. *Magnetizm gornyx porod* [Rock Magnetism]. Moscow, Mir, 1965. 348 p. (In Russian)
14. Prozorov R., Kogan V.G. Effective demagnetizing factors of diamagnetic samples of various shapes. *Phys. Rev. Appl.*, 2018, vol. 10, no. 1, art. 014030. <https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.10.014030>.
15. Shcherbakov V.P., Lhuillier F., Sycheva N.K. Exact analytical solutions for kinetic equations describing thermochemical remanence acquisition for single-domain grains: Implications for absolute paleointensity determinations. *J. Geophys. Res.: Solid Earth*, 2021, vol. 126, no. 5, art. e2020JB021536. <https://doi.org/10.1029/2020JB021536>.

⟨ **Для цитирования:** Щербakov В.П., Сычева Н.К. Расчет потенциальных барьеров и блокирующих температур малых псевдооднодоменных частиц методами микромагнетизма // Учен. зап. Казан. ун-та. Сер. Естеств. науки. 2023. Т. 165, кн. 4. С. 577–589. <https://doi.org/10.26907/2542-064X.2023.4.577-589>. ⟩

⟨ **For citation:** Shcherbakov V.P., Sycheva N.K. Calculation of potential barriers and blocking temperatures of small pseudo-single-domain particles by micromagnetism methods. *Uchenye Zapiski Kazanskogo Universiteta. Seriya Estestvennye Nauki*, 2023, vol. 165, no. 4, pp. 577–589. <https://doi.org/10.26907/2542-064X.2023.4.577-589>. (In Russian) ⟩