## МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ СУМСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ ІНСТИТУТ ПРИКЛАДНОЇ ФІЗИКИ

Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису

Рева Владислав Валерійович

УДК 537.624, 531.4, 519.677, 519.21

### ДИСЕРТАЦІЯ

## СТАТИСТИЧНІ ВЛАСТИВОСТІ СИСТЕМ ФЕРОМАГНІТНИХ НАНОЧАСТИНОК З ВМОРОЖЕНИМИ МАГНІТНИМИ МОМЕНТАМИ

01.04.02 – теоретична фізика Фізико-математичні науки

Подається на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело

\_\_\_В.В. Рева

Науковий керівник – Лютий Тарас Володимирович, кандидат фізико-математичних наук, доцент

Суми – 2020

#### АНОТАЦІЯ

*Рева В.В.* Статистичні властивості систем феромагнітних наночастинок з вмороженими магнітними моментами. – Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізикоматематичних наук за спеціальністю 01.04.02 – теоретична фізика. – Сумський державний університет, Суми, 2020.

Дисертаційна робота присвячена мікроскопічному аналізу поведінки феромагінтних наночастинок у в'язкій рідині під дією змінних зовнішніх магнітних полів. Детальне вивчення магнітної та обертової динаміки наночастинок має першорядне значення для визначення теплових і магнітних характеристик сильно збуджених систем таких наночастинок. Актуальність роботи походить як зі стабільного інтересу до розвитку нових методів дослідження складних систем, так і з множини практичних застосувань ферорідин в інженерії та біомедицині.

У роботі подано літературний огляд важливих результатів, що стосуються провідних досліджень властивостей систем феромагнітних наночастинок, що взаємодіють із зовнішнім періодичним полем, з термостатом та поміж собою завдяки диполь-дипольній взаємодії, яка має далекодіючий характер. Зокрема, розглянуто застосування класичної теорії лінійного відгуку магнітних систем до періодичної зовнішньої дії, що ґрунтується на концепції магнітної сприйнятливості. Розглянуто умови застосування такого підходу та наведено експериментальні підтвердження його обмеженості. Далі, розглянуто результати застосування мікроскопічного підходу, що базується на класичних рівняннях обертової динаміки жорсткого твердого тіла як у детерміністичному, так і у стохастичному наближеннях. Зазначено брак отриманих результатів стосовно залежності енергії магнітного поля, що поглинається наночастинками під час вимушеного обертання, від параметрів системи. Окрему увагу приділено аналізу впливу дипольної взаємодії та методологіям його визначення. Показано, що стандартні аналітичні підходи на кшталт теорії середнього поля не здатні забезпечити належної загальності та точності результатів. Проаналізовані можливості методу Монте-Карло та методу молекулярної динаміки для моделювання ансамблів магнітних частинок, завислих у рідині. Окреслено коло важливих технічних обмежень, що не дозволяють масштабувати чисельне моделювання та зазначені напрямки їх вирішення.

Індивідуальна динаміка кожної наночастинки описується відповідно до основного рівняння динаміки обертального руху, яке доповнюється кінематичним рівнянням, або умовою обертання абсолютно жорсткої кулі. Момент сили тертя за Стоксом приймається пропорційним до кутової швидкості обертання наночастики. Для зручності вихідне векторне рівняння подається у сферичних координатах. Дія термостату моделюється додаванням випадкового моменту сили, який являє собою гаусівський білий шум з нульовим середнім та кореляційною функцією, пропорційною до дельта-функції Дірака. Коефіцієнт пропорційності, що являє собою інтенсивність теплового шуму, установлюється шляхом запису відповідного рівняння Фоккера-Планка. Далі відтворюється статистично еквівалентне останньому рівнянню нове рівняння Ланжевена, яке називається ефективним. В подальшому саме ефективне рівняння Ланжевена використовується для чисельних розрахунків, оскільки в ньому білий шум можна інтерпретувати за Іто, що спрощує чисельні розрахунки.

Для розширення розробленого методу на випадок ансамблю феромагнітних частинок модельна система рівнянь доповнюється рівнянням для поступального руху та алгоритмом розрахунку дипольних полів, яка враховує дію усіх частинок ансамблю на вибрану. У такий спосіб реалізується широко відомий метод молекулярної динаміки, що застосовується для моделювання властивостей ансамблів частинок в реальному часі. Для розрахунку полів розробляється наближена процедура, що ґрунтується на алгоритмі Барнса-Хата. Сутність процедури у тому, що дипольні поля для найближчого оточення розраховуюся точно, а для досить віддалених ділянок ансамблю застосовується підхід середнього поля. Простір навколо вибраної частинки рекурсивним чином розбивається на вісім кубічних комірок, а на кожному етапі розбиття перевіряється кутовий розмір кожної комірки відносно вибраної частинки. Якщо цей розмір досить малий, то далі розраховується середнє значення намагніченості. Якщо досить великий – продовжується розбиття аж до ситуацій, коли комірки будуть містити одну частнику, або жодної. Чисельна процедура реалізується за допомогою технології паралельних обчислень CUDA на базі графічних процесорів, що дозволяє моделювати досить великі ансамблі (на десятки тисяч частинок) послуговуючись звичайними персональними комп'ютерами з ординарними графічними адаптерами. Також підхід дозволяє адаптацію до використання хмарних безкоштовних ресурсів, що базуються на графічних процесорах.

Для розуміння мікроскопічної природи процесів спочатку аналізується детерміністиний випадок вимушеного обертового руху. Для цього система рівнянь руху розв'язується аналітично для низки випадків. Зокрема, за умови дії циркулярно-поляризованого поля, отримується аналітичний розв'язок для випадку однорідної прецесії, що характеризується сталим значенням кута прецесії та кута відставання. За умови дії лінійно-поляризованого руху аналітично описано залежність полярного кута легкої вісі наночастинки від часу, або режим пласких коливань. Нарешті, для високочастотного випадку, коливальні траєкторії описуються у лінійному наближенні для полів усіх типів поляризації. Для усіх перелічених випадків отримано залежності для потужності втрат, які визначають енергію магнітного поля, що поглинається. Отримані результати аналізуються на предмет підбору оптимальних параметрів зовнішнього поля для отримання максимальної швидкості нагрівання ферорідини.

В рамках аналізу стохастичного випадку знаходиться розв'язок рівняння Фоккера-Планка для наночастинки, що збуджується циркулярнополяризованим зовнішнім полем, для випадків не надто великих частот поля та порівняно малих інтенсивностей теплового шуму. За отриманими щільностями ймовірності кутових станів наночастинки знаходиться вираз для середньої потужності втрат, де остання пропорційна до квадрату амплітуди, квадрату частоти поля та оберненопропоційна до квадрату температури. Для випадку дії лінійнополяризованого поля знаходиться формалізований запис цільності ймовірності для полярного кута потужності втрат у вигляді системи лінійних алгебраїчних рівнянь. Потужність втрат у цьому випадку пропорційна до одного з лінійних коефіцієнтів та аналізується чисельно. Демонструється, що залежність потужності втрат від частоти та амплітуди має складний характер і збільшення частоти може призводити до зменшення потужності втрат для малих інтенсивностей шуму. Аналізується залежність середньої швидкості обертання наночастинки від параметрів систем, зокрема від додаткового постійного поля. Показується, що тепловий шум може збільшувати швидкість обертання, а залежності цієї швидкості від прикладеного постійного поля, перпендикулярного площині поляризації бувають двох типів залежно від частоти.

Дослідження впливу колективних ефектів починається з аналізу рівноважних властивостей ансамблів феромагнітних наночастинок. Зокрема, використовуючи розроблену процедуру чисельного моделювання розраховується магнітна сприйнятливість та первинне намагнічування ансамблю залежно як від параметрів системи, так і від граничних умов, або від форми посудини, де ансамбль знаходиться. Демонструється, що властивості ферорідини значною мірою визначаються характером кластерів, що утворюються внаслідок дипольної взаємодії. За невеликих концентрацій частинок вони шикуються в ланцюжки і дипольне поле підсилює зовнішнє, що призводить до зростання сприйнятливості. З подальшим зростанням концентрації відбувається утворення кільцеподібних кластерів або антиферомагнітного упорядкування ланцюжків, які розташовані поруч. Це зменшує відгук середовища на зовнішнє поле. Тенденції істотно посилюються за рахунок форми посудини, яка впливає на форму кластерів.

Досліджується вплив взаємодії сприйнятливість ансамблів до зовнішніх періодичних полів залежно від параметрів поля та середовища. Для низькочастотних полів підтверджуються експериментальні дані, що взаємодія зменшує потужність втрат. У той самий час навіть невеликі зміни параметрів поля, призводять до істотної структурної перебудови середовища, що є причиною значних відхилень кількісної величини потужності втрат у порівнянні з результатами випадку однієї частинки. Ця різниця зменшується з частотою поля, оскільки для високих частот кожна частинка виконує коливання навколо свого початкового положення без повної інверсії намагніченості. Описується ефект, коли взаємодія між частинками та тепловий шум є конкуруючими факторами, та конструктивна роль шуму, яка полягає у збільшенні енергії поглинання за рахунок теплових флуктуацій. По перше, за великої інтенсивності шуму кластери руйнуються, що призводить до вивільнення окремих частинок. По друге, коли інтенсивність шуму не надто велика, теплові коливання частково розмивають порядок частинок у кластері. Це дає умови переорієнтаціям частинок у кластері між квазірівноважними станами, які утворені дипольними полями. Процес такого перемикання здійснюється через вкрай збуджені стани, що характеризуються високою енергією і є причиною збільшення потужності втрат.

Нарешті, розроблена в даному дослідженні методологія моделювання застосовується до дещо відмінної задачі, а саме для чисельного опису дрейфу феромагнітних наночастинок під дією сили Магнуса. Така сила виникає за умови сумісної синхронізованої дії періодичної зовнішньої сили, та зовнішнього магнітного поля, що коливається. Різна швидкість обтікання наночастинки з різних сторін призводить до наявності тиску у виділеному напрямку, який і пояснює природу сили Магнуса. Відповідний підбір параметрів дозволяє досягти ситуації коли середнє значення різниці гідродинамічного тиску за період не буде нульовим, що матиме результатом спрямований дрейф наночастинки. Ефект становить інтерес, оскільки зазначені вище періодичні дії мають нульове середнє значення.

Раніше було встановлено, що початкова фаза магнітного поля та кут повороту магнітного поля є важливими керуючими параметрами дрейфового руху частинок. Зокрема, вибором початкової фази можна визначати напрям дрейфового руху. В даній роботі записуються відповідні ефективні рівняння Ланжевена для випадку дії поля, що коливається. На базі цих рівнянь чисельно верифікується побудована статистична теорію дрейфу диспергованих феромагнітних наночастинок, в якій враховується як температурна залежність динамічної в'язкості рідини, так і теплові флуктуації. Аналізуються залежності середньої швидкості дрейфу для різних значень параметрів системи. Демонструється досить неочікуваний ефект, за якого зміна температури призводить до зміни напрямку дрейфу наночастинок на протилежний. Обговорюється можливість застосування досліджуваних явищ для прецезійної сепарації феромагнітних наночастинок за розміром.

Ключові слова: феромагінтна наночастинка, відгук ферорідини, жорсткий диполь, рівняння Фокера-Планка, ефективне рівняння Ланжевена, метод молекулярної динаміки, алгоритм Барнса-Хата, технологія CUDA, сила Магнуса.

#### Список публікацій здобувача за темою дисертації

#### 1. Наукові праці, в яких опубліковані основні наукові результати

- Lyutyy T. V. Simulation of Ferrofluids Properties in Confined Domains / T. V. Lyutyy, V. V. Reva, A. Yu. Polyakov // J. Nano- Electron. Phys. – 2012. – Vol. 4, no. 4. – Р. 04027 (9 pp). (Індексується РБД WoS та Scopus, SNIP = 0,461)
- Polyakov A. Yu. Large-scale ferrofluid simulations on graphics processing units / A. Yu. Polyakov, T. V. Lyutyy, S. Denisov, V. V. Reva, P. Hänggi, // Comp. Phys. Comm. – 2013. – Vol. 184, no. 6. – Р. 1483-1489. (Індексується РБД WoS, IF = 3,309 та Scopus, SNIP = 1,733)
- 3. Lyutyy T. V. Rotational properties of ferromagnetic nanoparticles driven by a precessing magnetic field in a viscous fluid / T. V. Lyutyy, S. I. Denisov, V. V. Reva, Yu. S. Bystrik, // Phys. Rev. E 2015. Vol. 92, no. 4. P. 042312 (10 pp). (Індексується РБД WoS, IF = 2,353 та Scopus, SNIP = 1,005)
- 4. Lyutyy T. V. Energy dissipation of rigid dipoles in a viscous fluid under the action of a time-periodic field: The influence of thermal bath and dipole interaction

/ Т. V. Lyutyy, **V. V. Reva** // Phys. Rev. E – 2018. – Vol. 97, no. 5. – P. 052611 (15 pp). (Індексується РБД WoS, IF = 2,353 та Scopus, SNIP = 1,005)

5. Denisov S. I. Temperature effects on drift of suspended single-domain particles induced by the Magnus force / S. I. Denisov, T. V. Lyutyy, V. V. Reva, A. S. Yermolenko // Phys. Rev. E – 2018. – Vol. 97, no. 3. – P. 032608 (9 pp). (Індексується РБД WoS, IF = 2,353 та Scopus, SNIP = 1,005)

#### 2. Наукові праці апробаційного характеру

- Лютый Т. В. Динамика ферромагнитных наночастиц в жидкости / Т. В. Лютый, В. В. Рева // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2011. Матеріали та програма науково-технічної конференції. 2011. С. 29.
- Лютый Т. В. Эффективная система уравнений Ланжевена для вращательного движения однодоменных ферромагнитных частиц / Т. В. Лютый, С. И. Денисов, В. В. Рева // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2014. Матеріали та програма науково-технічної конференції. 2014. С. 71.
- Reva V. V. Brownian Rotational Motion of Ferromagnetic Nanoparticle in Liquid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, S. I. Denisov // Proceedings of the 3rd International Conference Nanomaterials: Applications and Properties, Lviv, 2014. – Vol. 3. – 2014. – P. 01MFPM01.
- Reva V. V. Fokker-Planck Equation for the Spherical Motion of Ferromagnetic Nanoparticles in a Viscous Liquid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, S. I. Denisov // 6th International Conference Physics of Liquid Matter: Modern Problems – PLMMP-Kyiv 2014. – 2014. – P. 183.
- 10. Лютый Т. В. Эффективное уравнение Ланжевена для вращательной динамики ферромагнитной наночастицы / Т. В. Лютый, В. В. Рева // Збірник тез школи-семінару "Багатомасштабне моделювання фізичних процесів у конденсованих середовищах" (Суми, 21-22 жовтня 2014 р.). – Суми, 2014. – С. 25.
- Reva V. V. High-Performance Simulation of a Ferrofluid in a Circularly-Polarized Field / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, J. Partyka // 9th Internati-

onal Conference New Electrical and Electronic Technologies and their Industrial Implementation, Zakopane, Poland, June 23–26, 2015. –2015 – P. 142.

- Reva V. V. Forced rotation of a ferromagnetic fine particle in a viscous carrier: the stationary probability density / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, S. I. Denisov // International Conference Dynamical Systems and Their Applications, Kyiv, Ukraine June 22–26, 2015. –2015 – P. 36.
- 13. Лютый Т. В. Вынужденное сферическое движение магнитной частицы в жидкости: термические эффекты / Т. В. Лютый, С. И. Денисов, В. В. Рева // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2015. Матеріали та програма науково-технічної конференції. – 2015. – С. 67.
- 14. Лютый Т. В. Ферромагнитная наночастица в жидкости: Броуновское вращение и погло/-щение энергии / Т. В. Лютый, В. В. Рева // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2016. Матеріали та програма науково-технічної конференції. – 2016. – С. 37.
- 15. Reva V. V. Microwave absorption by a rigid dipole in a viscous fluid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy // 2016 II International Young Scientists Forum on Applied Physics and Engineering (YSF). – 2016. – Oct. – Р. 104-107. (Індексується РБД WoS та Scopus)
- Reva V. V. The Efficiency of RF-Field Energy Absorption by Ferromagnetic Nanoparticle in a Liquid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy // International School and Conference on Nanoscience and Quantum Transport 8 – 14 October 2016, Kyiv, Ukraine. – 2016 – P. 23.
- 17. Лютий Т. В. Вплив колективних ефектів на контрольоване нагрівання феррорідини змінним магнітним полем / Т. В. Лютий, В. В. Рева // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2017. Матеріали та програма науковотехнічної конференції. – 2017. – С. 63.
- Reva V. V. Interaction Effects in RF-Fields Energy Absorbtion by a Ferrofluid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, // VIII International Conference for Professional and Young Scientists Low Temperature Physics ICPYS-LTP, May 29 – June 2, 2017, Kharkiv, Ukraine. – 2017. – P. 82.

- Reva V. V. Energy dissipation of interacting rigid dipoles driven by the RFfield in a viscous fluid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, A. S. Yermolenko // 2017 IEEE International Young Scientists Forum on Applied Physics and Engineering (YSF). – 2017. – Oct. – P. 303-306. (Індексується РБД WoS та Scopus)
- 20. **Reva V. V.** Statistical properties of rigid dipole ensemble: analytical and numerical results / **V. V. Reva**, T. V. Lyutyy // VI Всеукраїнська науковопрактична конференція "Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики" – 2020. – С. 75-76).
- Рева В. В. Статистичні властивості систем феромагнітних наночастинок: модель жорсткого диполя / В. В. Рева, А. Т. Лютий, Т. В. Лютий // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2020. Матеріали та програма науковотехнічної конференції. – 2020. – С. 78.

#### SUMMARY

*Reva V.V.* Statistical properties of ferromagnetic nanoparticle systems with frozen magnetic moments. – Manuscript.

The thesis for the scientific degree of the candidate of physical and mathematical sciences by speciality 01.04.02 – theoretical physics. – Sumy State University Sumy, 2020.

The thesis is devoted to the microscopic analysis of the behavior of ferromagnetic nanoparticles in a viscous fluid under the action of AC external magnetic fields. A detailed study of the magnetic and rotational dynamics of nanoparticles is of paramount importance for determining the thermal and magnetic characteristics of highly excited systems of such nanoparticles. The actuality of the study stems from both a steady interest in the development of new methods for the description of complex systems and from the many applications of ferrofluids in engineering and biomedicine.

A literature review is presented firstly. The remarkable results concerning the properties of ferromagnetic nanoparticle systems interacting with an external periodic field, with a thermostat, and with each other due to a dipole-dipole interaction, which has a long-range character, are analyzed. In particular, the results of classical theory of linear response of magnetic systems to periodic external action based on the concept of magnetic susceptibility are discussed. The conditions of this approach are considered and experimental confirmation of its limitations is given. Next, the results of a microscopic approach based on the classical equations of rotation dynamics of a rigid body in both deterministic and stochastic approximations are considered in detail. The lack of obtained results regarding the dependence of the energy of magnetic field absorbed by the nanoparticles during the forced rotation on the system parameters is noted.

Special attention is paid to the analysis of the influence of dipole interaction and methodologies for its investigation. It is shown that standard analytical approaches, such as mean-field theory, are not capable of providing general and accurate results. The possibilities of the Monte Carlo method and the molecular dynamics method for simulation of ensembles of magnetic nanoparticles suspended in a liquid are analyzed. A number of important technical constraints that do not allow numerical simulation and the ways of their overcoming are outlined.

The individual dynamics of each nanoparticle is described according to the basic equation of rotational motion dynamics, which is supplemented by the kinematic equation, or the condition of rigid body rotation. In Stokes approximation a friction moment is assumed to be proportional to the angular velocity of the nanoparticle. For convenience, the original vector equation is given in spherical coordinates. The action of the thermal bath is modeled by a random moment, which is a Gaussian white noise with zero mean and a correlation function defined by the Dirac delta function. The proportionality factor, which is the intensity of thermal noise, is determined using the corresponding Fokker-Planck equation. Next, the new Langevin equation, which is called effective, is statistically equivalent to the Fokker-Planck one. In the future, this effective Langevin equation is used for numerical calculations, since white noise can be interpreted by Ito that simplifies numerical calculations.

To extend the developed method to the case of an ensemble of ferromagnetic particles, the model system of equations is supplemented by a translational equation and an algorithm for the calculation of dipole fields, which takes into account the effect of all the ensemble particles on the selected one. In this way, a widely known method of molecular dynamics, which is used to model the properties of particle ensembles in real time, is implemented. An approximate procedure based on the Barnes-Hut algorithm is being developed to calculate the dipole fields. The essence of the procedure is that the dipole fields for the nearest neighbors are calculated exactly, and for fairly remote areas of the ensemble the mean-field approach is applied. The space around the selected particle is recursively divided into eight cubic cells, and at each step the angular size of each cell relative to the selected particle is checked. If this size is small enough, then the average value of the magnetization is calculated. If it is large enough, the division continues up to situations when the cell will contain one nanoparticle or none. The numerical procedure is implemented using CUDA technology based on GPUs, which allows the modeling of large enough ensembles (tens of thousands of particles) using ordinary personal computers with cheap enough graphics adapters. The approach also allows you to adapt to the use of cloud-based GPU servers.

In order to understand the microscopic nature of the processes, the deterministic case of a forced rotational motion is first analyzed. For this, the system of equations of motion is solved analytically for a number of cases. In particular, if the circularly polarized field is applied, an analytical solution is obtained for the case of uniform precession, characterized by a constant value of the precession angle and the lag angle. Under the action of linearly polarized external field, the time dependence of the polar angle of the easy axis of the nanoparticle, or the mode of planar oscillations, is analytically described. Finally, for the high-frequency case, the oscillatory trajectories are described in a linear approximation for fields of all types of polarization. For all of these cases, the power loss dependencies, which determine the energy of the absorbed magnetic field, are obtained. These results are analyzed in order to select the optimal parameters of the external field to get the maximum heating rate of the ferrofluid.

Within the stochastic case analysis, the solution of the Fokker-Planck equation for a nanoparticle driven by the circularly polarized external field is found for cases where the field frequencies and thermal noise intensities are not too high. According to the obtained probability densities of the nanoparticle angular states, an expression for the average loss power is derived. Here the latter is proportional to the square of the field amplitude, the square of the field frequency, and inversely proportional to the square of the temperature. For the case of linearly polarized field action, the probability density for the polar angle of loss power is derived in the form of a system of linear algebraic equations. The power loss in this case is proportional to one of the linear coefficients and is analyzed numerically. It is shown that the frequency dependence of the power loss on and amplitude is complex and increasing the frequency can reduce the loss power for low noise intensities. The dependence of the average rotation speed of the nanoparticles on the system parameters, in particular on the additional permanent field, is analyzed. It is shown that thermal noise can increase the rotational speed, and depending on the applied permanent field perpendicular to the polarization plane, there are two types dependencies on the frequency.

The study of the collective effects begins with an analysis of the equilibrium properties of ferromagnetic nanoparticle assemblies. In particular, using the developed numerical simulation procedure, the magnetic susceptibility and primary magnetization of the ensemble are calculated depending on both the system parameters and the boundary conditions, or the shape of the vessel where the ensemble is located. It is demonstrated that the properties of ferrofluid are largely determined by the nature of the clusters formed by dipole interaction. At low concentrations of particles, they are lined up in chains and the dipole field enhances the external one, which increases susceptibility. With increasing concentration, the formation of annular clusters or antiferromagnetic ordering of the chains that are located nearby. This reduces the ensemble response to the external field. Trends are significantly enhanced by the shape of the vessel, which affects the shape of the clusters.

The interaction influence on susceptibility to external periodic fields depending on field and environment parameters is investigated. For low-frequency fields, experimental data, that the interaction reduces the power loss, is confirmed. At the same time, even small changes in the field parameters lead to a significant restructuring of the ensemble. This causes the significant variations in the power loss value compared to the results of the single nanoparticle case. The difference decreases with the field frequency, because for high frequencies, each particle oscillates around its initial position without complete inversion of magnetization. The interaction between particles and thermal noise are competing factors, and the constructive role of noise, which is to increase the absorption energy due to thermal fluctuations, is discussed. First, clusters are destructed at high noise intensity, which results in the release of individual particles ad increases the susceptibility. Second, when the noise intensity is not too large, thermal fluctuations partially blur the order of the particles in the cluster. This gives conditions for reorientation of particles in the cluster between quasi-equilibrium states created by dipole fields. The process of such switching is carried out through extremely excited states, which are characterized by high energy and cause an increase in the power loss.

Finally, the modeling methodology developed in this study is applied to a similar problem. Here the numerical description of the drift of ferromagnetic nanoparticles under the action of Magnus force is performed. Such force arises under combined and synchronized action of the periodic external force and the oscillating external magnetic field. Different velocity of nanoparticle flowing from different sides leads to the presence of pressure in the selected direction, which explains the nature of the Magnus force. Appropriate selection of parameters allows to achieve a non-zero average value of the difference in hydrodynamic pressure. This leads to drift of the nanoparticle, which is a transport phenomenon. The drift is of interest because the above periodic external driven forces have zero mean value.

It was previously established that the initial phase of the magnetic field and the angle of rotation of the magnetic field are important control parameters of the nanoparticle drift. In particular, the choice of the initial phase can determine the drift direction. In this study the corresponding effective Langevin equations for the case of an oscillating field are derived. Based on these equations, the statistical drift theory of suspended in a liquid ferromagnetic nanoparticles is numerically verified. Here both the temperature dependence of the dynamic viscosity of the liquid and the thermal fluctuations are taking into account. The dependencies of the average drift velocity for different values of the system parameters are analyzed. A rather unexpected effect is demonstrated where the change in temperature causes the nanoparticle drift to change in the opposite direction. The possibility of using the investigated phenomena for precision separation of ferromagnetic nanoparticles by size is discussed. **Key words:** ferromagnetic nanoparticle, ferrofluid response, rigid dipole, Fokker-Planck equation, effective Langevin equation, molecular dynamics method, Barnes-Hat algorithm, CUDA technology, Magnus force.

#### The publication list of the applicant of the thesis

#### 1. The scientific works containing the main published scientific results

- Lyutyy T. V. Simulation of Ferrofluids Properties in Confined Domains / T. V. Lyutyy, V. V. Reva, A. Yu. Polyakov // J. Nano- Electron. Phys. – 2012. – Vol. 4, no. 4. – P. 04027 (9 pp). (is idexed by WoS and Scopus, SNIP = 0,461) (in Russian)
- Polyakov A. Yu. Large-scale ferrofluid simulations on graphics processing units / A. Yu. Polyakov, T. V. Lyutyy, S. Denisov, V. V. Reva, P. Hänggi, // Comp. Phys. Comm. – 2013. – Vol. 184, no. 6. – P. 1483-1489. (is idexed by WoS, IF = 3,309 and Scopus, SNIP = 1,733)
- Lyutyy T. V. Rotational properties of ferromagnetic nanoparticles driven by a precessing magnetic field in a viscous fluid / T. V. Lyutyy, S. I. Denisov,
   V. V. Reva, Yu. S. Bystrik, // Phys. Rev. E - 2015. - Vol. 92, no. 4. - P. 042312 (10 pp). (is idexed by WoS, IF = 2,353 and Scopus, SNIP = 1,005)
- 4. Lyutyy T. V. Energy dissipation of rigid dipoles in a viscous fluid under the action of a time-periodic field: The influence of thermal bath and dipole interaction / T. V. Lyutyy, V. V. Reva // Phys. Rev. E 2018. Vol. 97, no. 5. P. 052611 (15 pp). (is idexed by WoS, IF = 2,353 and Scopus, SNIP = 1,005)
- 5. Denisov S. I. Temperature effects on drift of suspended single-domain particles induced by the Magnus force / S. I. Denisov, T. V. Lyutyy, V. V. Reva, A. S. Yermolenko // Phys. Rev. E 2018. Vol. 97, no. 3. P. 032608 (9 pp). (is idexed by WoS, IF = 2,353 and Scopus, SNIP = 1,005)

#### 2. The scientific works of an approbatory character

6. Lyutyy T. V. Dynamics of ferromagnetic nanoparticles in a liquid / T. V. Lyutyy,
V. V. Reva // Physics, Electronics, Electrotechnics, FEE-2011. Abstract Book and Program of the Conference. - 2011. - P. 29. (in Russian)

- Lyutyy T. V. An effective system of Langevin equations for the rotational motion of single-domain ferromagnetic particles / T. V. Lyutyy, S. I. Denisov,
   V. V. Reva // Physics, Electronics, Electrotechnics, FEE-2014. Abstract Book and Program of the Conference. – 2014. – P. 71. (in Russian)
- Reva V. V. Brownian Rotational Motion of Ferromagnetic Nanoparticle in Liquid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, S. I. Denisov // Proceedings of the 3rd International Conference Nanomaterials: Applications and Properties, Lviv, 2014. – Vol. 3. – 2014. – P. 01MFPM01.
- Reva V. V. Fokker-Planck Equation for the Spherical Motion of Ferromagnetic Nanoparticles in a Viscous Liquid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, S. I. Denisov // 6th International Conference Physics of Liquid Matter: Modern Problems – PLMMP-Kyiv 2014. – 2014. – P. 183.
- Lyutyy T. V. Effective Langevin equation for the rotational dynamics of a ferromagnetic nanoparticle / T. V. Lyutyy, V. V. Reva // Proceedings of the Workshop "Large-scale modelling of physical processes in condensed media" (Sumy, 21-22 October 2014).. – Sumy, 2014. – P. 25. (in Russian)
- Reva V. V. High-Performance Simulation of a Ferrofluid in a Circularly-Polarized Field / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, J. Partyka // 9th International Conference New Electrical and Electronic Technologies and their Industrial Implementation, Zakopane, Poland, June 23–26, 2015. –2015 – P. 142.
- Reva V. V. Forced rotation of a ferromagnetic fine particle in a viscous carrier: the stationary probability density / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, S. I. Denisov // International Conference Dynamical Systems and Their Applications, Kyiv, Ukraine June 22–26, 2015. –2015 – P. 36.
- Lyutyy T. V. Forced spherical motion of a magnetic particle in a liquid: thermal effects / T. V. Lyutyy, S. I. Denisov, V. V. Reva // Physics, Electronics, Electrotechnics, FEE-2015. Abstract Book and Program of the Conference. – 2015. – P. 67. (in Russian)
- Lyutyy T. V. Ferromagnetic Nanoparticle in a Liquid: Brownian Rotation and Energy Absorption / T. V. Lyutyy, V. V. Reva // Physics, Electronics,

Electrotechnics, FEE-2016. Abstract Book and Program of the Conference. – 2016. – P. 37. (in Russian)

- 15. Reva V. V. Microwave absorption by a rigid dipole in a viscous fluid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy // 2016 II International Young Scientists Forum on Applied Physics and Engineering (YSF). – 2016. – Oct. – P. 104-107. (is indexed by WoS and Scopus)
- Reva V. V. The Efficiency of RF-Field Energy Absorption by Ferromagnetic Nanoparticle in a Liquid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy // International School and Conference on Nanoscience and Quantum Transport 8 – 14 October 2016, Kyiv, Ukraine. – 2016 – P. 23.
- Lyutyy T. V. The role of collective effects on the controlled heating of ferroliquid by an AC magnetic field / T. V. Lyutyy, V. V. Reva // Physics, Electronics, Electrotechnics, FEE-2017. Abstract Book and Program of the Conference. – 2017. – P. 63. (in Ukrainian)
- Reva V. V. Interaction Effects in RF-Fields Energy Absorbtion by a Ferrofluid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, // VIII International Conference for Professional and Young Scientists Low Temperature Physics ICPYS-LTP, May 29 – June 2, 2017, Kharkiv, Ukraine. – 2017. – P. 82.
- Reva V. V. Energy dissipation of interacting rigid dipoles driven by the RFfield in a viscous fluid / V. V. Reva, T. V. Lyutyy, A. S. Yermolenko // 2017 IEEE International Young Scientists Forum on Applied Physics and Engineering (YSF). – 2017. – Oct. – P. 303-306. (is indexed by WoS and Scopus)
- 20. Reva V. V. Statistical properties of rigid dipole ensemble: analytical and numerical results / V. V. Reva, T. V. Lyutyy // VI All-Ukrainian scientificpractical conference "Modern problems of experimental, theoretical physics and methods of teaching physics" – 2020. – C. 75-76).
- Reva V. V. Статистичні властивості систем феромагнітних наночастинок: модель жорсткого диполя / V. V. Reva, A. T. Lyutyy, T. V. Lyutyy // Physics, Electronics, Electrotechnics, FEE-2015. Abstract Book and Program of the Conference. – 2020. – P. 78. (in Ukrainian)

## **3MICT**

BCI	ГУП		22	
1.	ΦΕΡΟ	ОМАГНІТНІ НАНОЧАСТИНКИ ТА ФЕРОМАГНІТНІ РІДИНИ:		
	ВЛАС	СТИВОСТІ, ЗАСТОСУВАННЯ ТА МОДЕЛЬНИЙ ОПИС	30	
1.1.	Феромагінтні наночастики та ферорідини 3			
1.2.	. Теоретичне описання динаміки ферормагнітної частинки в рідині			
	1.2.1.	Динаміка частинки з вмороженим моментом: підходи та моделі	35	
	1.2.2.	Статистичний підхід до опису поведнінки частинки з вморо-		
	Σ	кеним моментом у рідині	38	
1.3.	Взаєм	одія частинки з вмороженим моментом із зовнішнім полем	41	
	1.3.1.	Квазірівноважне наближення	41	
	1.3.2.	Випадок довільного співвідношення між магнітною та тепло-		
	В	ою енергіями	42	
1.4.	Bpaxy	вання дипольної взаємодії	44	
	1.4.1.	Результати аналітичних наближень	44	
	1.4.2.	Потенціали взаємодії	46	
	1.4.3.	Метод Монте-Карло	47	
	1.4.4.	Метод молекулярної динаміки	51	
	1.4.5.	Розрахунок дипольних полів	54	
1.5.	Висно	вки до розділу 1	56	
2. МОДЕЛЬ НАНОЧАСТИНКИ З ВМОРОЖЕНИМ МАГНІТ				
	MEH	ГОМ: ОСНОВНІ РІВНЯННЯ	58	
2.1.	Детер	міністичне наближення: базові рівняння	58	
	2.1.1.	Умови застосування детерміністичного наближення для моде-		
	J	і з вмороженим магнітним моментом	60	

	2.1.2.	Стохастичне наближення: основні рівняння	62
	2.1.3.	Стохастичне наближення: рівняння Фокера-Планка	63
	2.1.4.	Стохастичне наближення: ефективні рівняння Ланжевена	68
	2.1.5.	Втрати потужності: визначення та методика розрахунку	71
	2.1.6.	Моделювання ансамблю взаємодіючих частинок	75
2.2.	Техно	логії числового моделювання	78
	2.2.1.	All-Pair алгоритм	78
	2.2.2.	Застосування алгоритму Барнса-Хата	80
	2.2.3.	Верифікация та попередні чисельні результати	84
	2.2.4.	Висновки до розділу 2	86
3.	ВЗАЄ	МОДІЯ НАНОЧАСТИНКИ З ВМОРОЖЕНИМ МОМЕНТОМ	
	I3 30	ВНІШНІМ ПЕРІОДИЧНИМ ПОЛЕМ: АНАЛІТИЧНІ РЕЗУЛЬ-	
	ТАТИ		87
3.1.	Детер	міністичний обертальний рух та потужність втрат наночастинки	
	у пері	одичному зовнішньому полі	87
	3.1.1.	Детерміністичне наближення: дія циркулярно-поляризованого	
	П	ОЛЯ	87
	3.1.2.	Детерміністичне наближення: дія лінійно-поляризованого	
	П	оля	92
	3.1.3.	Детерміністичне наближення: межа великих частот та лінійне	
	Н	аближення	94
3.2.	Вплие	в термостату на обертальну динаміку наночастинки	97
	3.2.1.	Стохастичне наближення: дія циркулярно-поляризованого	
	П	ОЛЯ	97
	3.2.2.	Стохастичне наближення: дія лінійно-поляризованого поля	109
3.3.	Висно	вки до розділу 3	112
4.	AHCA	МБЛЬ НАНОЧАСТИНОК З ВМОРОЖЕНИМ МОМЕНТОМ:	
	РЕЗУ	ЛЬТАТИ МОДЕЛЮВАННЯ З УРАХУВАННЯМ ВЗАЄМОДІЇ. І	114

4.1.	Рівноважні характеристики ансамблю та вплив граничних умов 114			
4.2.	Вплив взаємодії між частинками на потужність втрат 123			
4.3.	Висновки до розділу 4131			
5.	СПРЯМОВАНИЙ ТРАНСПОРТ ПЕРІОДИЧНО ЗБУДЖЕНИХ ФЕ-			
	РОМАГНІТНИХ НАНОЧАСТИНОК, ІНДУКОВАНИЙ СИЛОЮ МА-			
	ГНУСА В РІДКІЙ МАТРИЦІ133			
5.1.	Вступ до розділу 5133			
5.2.	Феномен транспорту: основні рівняння та аналітичні результати 134			
5.3.	Температурні ефекти в дрейфовому русі: чисельні результати138			
5.4.	Висновки до розділу 5143			
ОСНОВНІ ВИСНОВКИ				
СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ148				

#### вступ

#### Актуальність теми.

Невпинний розвиток нанотехнологій та впровадження нових матеріалів на базі феромагнітних наночастинок вимагають ґрунтовного аналізу фізичних процесів, що протікають в системах, які вони утворюють. З аналізу поведінки наночастинок, зафіксованих у твердій матриці відомо, що існують якісно різні режими магнітної та обертової динаміки наночастинок, які можуть змінювати один одного при зміні того чи іншого керуючого параметра. Так, наприклад, зміна динамічних режимів, яка відбувається при зміні амплітуди або частоти зовнішнього магнітного поля, може спричинити як різке зменшення, так і збільшення енергії цього поля, що поглинається системою наночастинок у одиницю часу. Деякі результати, отримані іншими дослідниками для наночастинок у рідкому середовищі вказують, що подібних ефектів слід очікувати й у випадку вимушеного обертового руху наночастинки з вмороженим магнітним моментом. Дане дисертаційне дослідження присвячене мікроскопічному аналізу поведінки феромагнітних наночастинок у в'язкій рідині під дією змінних зовнішніх магнітних полів, оскільки детальне вивчення магнітної та обертової динаміки наночастинок має першорядне значення для визначення теплових і магнітних характеристик сильно збуджених систем таких наночастинок.

У багатьох випадках результати, які раніше були отримані в рамках тих чи інших наближень, не дають вичерпних відповідей на важливі питання. Так, наприклад, квазірівноважне наближення, яке зазвичай використовується для визначення потужності втрат енергії змінного магнітного поля, у випадку високоанізотропних наночастинок перестає працювати. Далі, використання лінійного наближення не дозволяє дослідити ефекти, пов'язані з нелінійним характером магнітної і механічної динаміки феромагнітних наночастинок. Спроби ж врахування статистичного характеру обертального руху феромагнітних наночастинок за допомогою рівняння Фоккера-Планка не були успішними у повній мірі як з точки зору визначення потужності втрат, так і з точки зору статистичних характеристик обертального руху. Саме тому є затребуваним опис як детерміністичних обертальних траєкторій наночастинок, що збуджуються періодичними полями, так і впливу на них теплових флуктуацій. Особливий інтерес має також знаходження ефективних рівнянь Ланжевена для кутових координат, які б дозволяли трактувати білий шум, що моделює дію термостату, у численні Іто для максимальної простоти подальшого чисельного моделювання. Важливість цього зумовлена тим, що аналітичні результати можуть бути отримані лише для окремих випадків, а для довільних амплітуд та частот зовнішнього поля опис можливий лише на базі чисельного моделювання. Інтерпретація шуму за Іто дозволить зробити чисельну процедуру максимально простою.

Дослідження впливу диполь-дипольної взаємодії є актуальним через те, що колективні ефекти в загальному випадку будуть вносити визначний вплив на відгук ансамблів наночастинок на зовнішні періодичні поля. Реальні експерименти показують, що агломерація наночастинок у кластери здатна суттєво зменшувати величину енергії, яка поглинається. Однак, цей вплив суттєво різниться залежно від параметрів як самого ансамблю, так і зовнішнього поля. Для розуміння зазначеного феномена необхідно класифікувати всі можливі види руху та вивчити мікроскопічну природу поглинання енергії для кожного з них. Задача багатьох тіл, яку потрібно вирішити в даному випадку, потребує підходів, що вимагають нетривіальних знань та навичок щодо апаратної частини і програмної реалізації чисельних експериментів. Незважаючи на те, що моделювання подібних систем активно здійснюється вже десятки років, комплексне дослідження впливу колективних ефектів на поглинання енергії здійснене не було. Крім того, будь-яка оптимізація процедури моделювання поведінки великих ансамблів об'єктів, що взаємодіють між собою, за допомогою стандартних апаратних засобів, без залучення кластерів та суперкомп'ютерів, є дуже важливою з точки зору розповсюдження досвіду. Подібний клас задач є досить широким та включає в себе задачі з різних галузей природничих, технічних та соціальних наук.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Дисертаційна робота виконана на кафедрі електроніки, загальної та прикладної фізики Сумського державного університету. Результати роботи отримано під час виконання держбюджетних науково-дослідних робіт: "Аномальні дифузійні та релаксаційні властивості класичних та квантових блукань з неперервним часом", за підтримки МОН (№ 0112U001383, 2012 – 2014 рр.); "Магнітні, теплові та транспортні властивості періодично збуджених систем феромагнітних наночастинок", за підтримки МОН (№ 0116U002622, 2016 – 2018 рр.); "Спрямований транспорт та дисипація енергії в системах феромагнітних наночастинок і магнітних скірміонів", за підтримки МОН (№ 0119U100772, 2019 – 2021 рр.), "Properties of the systems of ferromagnetic fine particles with frozen magnetic moments", Індивідуальний грант програми Eminence II, Erasmus Mundus, Університет Адама Міцкевича, м. Познань, Польща.

**Мета і завдання дослідження**. Метою дисертаційної роботи є послідовне теоретичне і чисельне дослідження відгуку ансамблів феромагнітних наночастинок, завислих у рідині, на зовнішні періодичні поля з врахуванням дипольної взаємодії та термостату.

Для досягнення поставленої мети необхідно вирішити такі завдання:

• побудова базової системи рівнянь для опису регулярної і стохастичної динаміки намагніченості наночастинок та їх обертального і трансляційного руху;

• визначення потужності втрат енергії змінного магнітного поля в системах наночастинок, розподілених у рідкій матриці;

• чисельне дослідження транспорту наночастинок в феромагнітних рідинах, що базується на ефекті Магнуса;

• чисельне моделювання магнітних та структурних властивостей періодично збуджених систем наночастинок з урахуванням їх диполь-дипольної взаємодії.

*Об'ект досліджень*. Динаміка намагніченості наночастинок, їх механічний рух в детермінованих і випадкових (теплових) магнітних полях.

Предмет досліджень. Залежність відгуку на зовнішнє поле магнітної енергії, що поглинається системами феромагнітних наночастинок, намагніченості таких систем та швидкості індукованого транспорту наночастинок від характеру вимушеної динаміки наночастинок, параметрів системи, параметрів зовнішнього поля і температури.

*Методи досліджень*. У дисертаційній роботі проведено дослідження регулярної та стохастичної вимушеної динаміки феромагнітних наночастинок, завислих у рідині, за допомогою методів статистичної та математичної фізики, методів числового моделювання, та технік паралельних обчислень.

Перелік основних методів, що були застосовані:

• Метод рівнянь Ланжевена для опису динаміки феромагнітної наночастинки з урахуванням дії випадкових (теплових) магнітних полів та, зокрема, метод ефективних рівнянь Ланжевена. Основна перевага останніх над базовими рівняннями Ланжевена полягає в тому, що вони дозволяють здійснювати чисельний аналіз відчутно ефективніше.

• Метод рівняння Фоккера-Планка для сумісної щільності ймовірності намагніченості та кутової швидкості феромагнітної наночастинки. Необхідність використання саме цього рівняння зумовлена тим фактом, що у відповідності з базовими рівняннями Ланжевена динаміка намагніченості наночастинок залежить від їх механічного руху (і навпаки). У випадку, коли зовнішнє магнітне поле є обертовим, лінійно поляризованим або прецесійним, були адаптивно застосовані асимптотичні методи наближеного розв'язання цього рівняння.

• Метод молекулярної динаміки, що базується на ефективних рівняннях Ланжевена, для кращої алгоритмізації чисельних досліджень руху наночастинок. Інтерпретація за Іто білого шуму, яким апроксимується дія термостату, дозволяє мінімізувати час однієї ітерації, що дозволяє здійснювати моделювання ансамблів з досить великою кількістю елементів.

• Іншими факторами оптимізації та забезпечення високопродуктивних обчислень є: 1) Алгоритм Барнса-Хата для зменшення часу розрахунків локальних дипольних полів з мінімальною втратою точності. Алгоритм точно розраховує внесок від найближчих наночастинок, а до віддалених застосовує метод середнього поля. 2) Використання технології CUDA та графічних процесорів бюджетних відеоадаптерів. У такий спосіб отримано техніку паралельних обчислень, продуктивність якої стрімко збільшується з ростом класу обчислювальних потужностей, ціна яких зростає більш помірно.

#### Наукова новизна одержаних результатів:

• У детерміністичному наближенні вперше отримано: аналітичні вирази для обертових траєкторій наночастинки, що збуджується лінійнополяризованим полем в усьому спектрі амплітуд і частот; аналітичні вирази для обертових траєкторій під час дії полів усіх типів у високочастотному наближенні; аналітичні вирази для енергії зовнішнього поля, що поглинається наночастинкою.

• Вперше отримані асимптотичні вирази для полярного кута та чисельні дані для середньої швидкості обертання під час вимушеного руху наночастинки, що збуджується циркулярно-поляризованим полем. Вперше проаналізовано температурні залежності потужності втрат для різних амплітуд і частот поля.

• Вперше досліджено конкуруючий вплив теплового шуму та дипольної взаємодії на енергію змінного поля, яку поглинає ферорідина. Показано, що різниця між детерміністичним та стохастичним випадком є суттєвою для малих частот, однак з ростом частоти стає незначною. Вперше доведено, що даний ефект має детерміністичне походження та пов'язаний з тим, що з ростом частоти відгук наночастинки на зовнішнє поле формується незначним коливальним рухом намагніченості наночастинок навколо власних рівноважних положень.

• Вперше встановлено існування умов, за яких у досліджуваній системі спостерігається конструктивна роль шуму, що полягає у збільшенні енергії, що поглинається зі зростанням температури внаслідок руйнування впорядкування у кластерах наночастинок та перехід окремих наночастинок з одного квазірівноважного стану до іншого.

• Вперше отримані залежності середньої швидкості дрейфу феромагнітних наночастинок під дією ефекту Магнуса від розміру наночастинок, початкової

фази змінного поля, що діє на наночастинку, та температури. Встановлені умови, при яких зміна температури призводить до зміни напрямку дрейфу наночастинок на протилежний.

#### Практичне значення одержаних результатів.

Отримані результати дозволять вдосконалювати та формулювати конкретні технічні рекомендації стосовно застосування збуджених систем феромагнітних наночастинок у

• Магнітній гіпертермії – сучасному і перспективному методі терапії раку з мінімальними побічними ефектами. Очікувані результати спрямовані на підвищення керованості процесу нагрівання та пошук оптимального балансу з точки зору ефективність-безпека.

• Нових композитних матеріалах для антирадарних покриттів безпілотних літальних апаратів, броньованої техніки, тактичних ракет тощо. Результати дослідження дозволять сформулювати вимоги до феромагнітних наночастинок як складових надійних та ефективних поглинальних матеріалів.

• Приладах та методах для прецизійної сепарації наночастинок за їх розміром.

Особистий внесок дисертанта полягає у пошуку та аналізі літературних джерел, а також проведенні наукового дослідження за темою дисертації. Результати дисертації базуються на дослідженнях, здійснених як у співпраці з науковим керівником – канд. фіз.-мат. наук, доцентом Т. В. Лютим, так і особисто автором. Постановка мети дисертаційної роботи, наукових завдань, методів їх вирішення та аналізу, а також обговорення отриманих результатів проводилися разом із науковим керівником. Здобувач брав участь на всіх етапах наукового дослідження: у проведенні аналітичних розрахунків та числового моделювання, аналізі одержаних результатів, оформленні та опублікуванні наукових праць.

У роботі [1] автор здійснив розрахунок явного вигляду сили, що діє на кожну наночастинку залежно від величини дипольного поля, що діє на неї; здійснював тестування написаної програми та аналіз оптимальності програмного коду; здійснював візуалізацію результатів чисельного експерименту у реальному часі.

У роботі [2] автор організовував чисельний експеримент: задавав набори параметрів системи та параметри чисельних процедур, модифікував код основної програми та написав автоматизовані скрипти для запусків, перевірив коректність та зберіг дані, обробив їх та запропонував попередні висновки.

У роботі [3] автор здійснив контрольні обчислення та записав параметризовані ефективні рівняння Ланжевена, придатні до чисельного моделювання, розпланував та організував чисельний експеримент: розробив алгоритм та реалізував програму мовою C++, забезпечив паралелізацію обчислень за допомогою технології CUDA, зберіг та обробив чисельні дані, підготував графічний матеріал та його опис.

У роботі [4] автор здійснив аналіз температурної залежності потужності втрат для різних амплітуд і частот зовнішнього лінійно-поляризованого поля шляхом розв'язання системи лінійних алгебраїчних рівнянь відносно коефіцієнтів у поліномі Лежандра. Автор повністю реалізував чисельний експеримент та збір даних як для стохастичного одночастинкового наближення, так і для ансамблю взаємодіючих наночастинок.

Нарешті, у роботі [5] автором дисертації здійснено постановку чисельного експерименту, проведено аналіз даних, розроблений відповідний графічний матеріал та його змістова інтерпретація у тексті.

Основна частина наукових результатів особисто презентувалась дисертантом на національних і міжнародних наукових конференціях і школах [6–21]. Усі наукові положення та висновки, винесені на захист, належать автору дисертації.

Апробація результатів дисертації. Основні наукові результати дисертаційної роботи оприлюднено та обговорено на наступних конференціях і семінарах: Науково-технічній конференції "Фізика, електроніка, електротехніка" (Суми, 2011, 2014, 2015, 2016, 2017, 2020 рр.); Міжнародній науковій конференції "The 3rd International Conference "Nanomaterials: Applications and Properties" (Lviv, 2014 р.); Міжнародній науковій конференції "6th International Conference Physics of Liquid Matter: Modern Problems – PLMMP-2014" (Kyiv, 2014 p.); Школі-семінарі "Багатомасштабне моделювання фізичних процесів у конденсованих середовищах", (Суми, 2014 p.); Міжнародній науковій конференції "9th International Conference New Electrical and Electronic Technologies and their Industrial Implementation", (Zakopane, 2015 p.); Міжнародній науковій конференції "International Conference Dynamical Systems and Their Applications" (Kyiv, 2015 p.); Міжнародній науковій конференції "IEEE International Young Scientists Forum on Applied Physics (YSF)" (Kharkiv, 2016 p.; Lviv, 2017 p.); Міжнародній школі-конференції "International School and Conference on Nanoscience and Quantum Transport" (Kyiv, 2016 p.); Міжнародній науковій конференції "VIII International Conference for Professional and Young Scientists Low Temperature Physics ICPYS-LTP" (Kharkiv, 2017 p.), VI Всеукраїнській науково-практичній конференції "Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики" (Суми, 2020 p.).

Публікації. Результати дисертаційної роботи опубліковані у 22 наукових працях, із них: 4 статті у провідних фахових журналах, що індексуються наукометричними базами Scopus та Web of Science; 1 стаття у провідному фаховому журналі, що індексується наукометричною базою Scopus; 15 тез доповідей конференцій та дві праці конференції, що індексуються Scopus та Web of Science.

Структура та обсяг роботи. Дисертаційна робота складається із вступу, п'яти розділів, висновків, переліку використаних джерел та додатків. Зміст дисертації викладено на 173 сторінках друкованого тексту, з яких 126 сторінок основного тексту, що містить 34 рисунка та одну таблицю. Список використаних джерел складається із 194 найменування, розміщеного на 26 сторінках.

## ФЕРОМАГНІТНІ НАНОЧАСТИНКИ ТА ФЕРОМАГНІТНІ РІДИНИ: ВЛАСТИВОСТІ, ЗАСТОСУВАННЯ ТА МОДЕЛЬНИЙ ОПИС

#### 1.1. Феромагінтні наночастики та ферорідини

Феромагнітні наночастинки [22–24] були і залишаються об'єктами уваги дослідників. Зазначені об'єкти демонструють низку унікальних фізичних властивостей, більшість з яких пов'язано з однодоменним станом. Відомо, що макроскопічні феромагнетики мають мультидоменну структуру з міркувань мінімізації магнітостатичної енергії. Саме тому феромагнетик після охолодження від точки Кюрі має нульову залишкову намагніченість. Різний напрямок намагніченостей окремих доменів призводить до взаємної компенсації та нульової результуючої намагніченості усього зразку. Магнітостатична енергія пропорційна до об'єму, або третій степені лінійного розміру домену, тоді як енергія утворення доменної стінки пропорційна її площі, або другій степені лінійного розміру домена. Це означає, що для кожного типу феромагнетика настає така ситуація, що енергія, необхідна для утворення доменної стінки задля мінімізації магнітостатичної енергії, перевищить виграш у зменшенні магнітостатичної енергії. За таких умов частинці феромагнетика вигідно залишитись у однодоменному стані. Для різних матеріалів характерний розмір однодоменного стану. Так, наприклад, для заліза та нікелю такий критичний розмір складає 20 та 60 нм відповідно [25]. Нижньою ж межею існування однодоменних частинок є теплове руйнування. Так, за оцінкою відповідного співвідношення невизначеностей Гейзенберга [26] починаючі з 1 нм феромагнітне впорядкування вже неможливе.

У найпростішому випадку магнітна динаміка в однодоменній частинці здійснюється шляхом т.з. когерентного обертання, під час якого всі спінові моменти обертаються синхронно та зорієнтовані в одну й ту саму сторону. Модель була запропонована майже 70 років тому Стонером (Stoner) та Вольфартом (Wohlfarth) [27,28]. Вона набула значної популярності в дослідницьких колах, оскільки гарно підходила для аналітичного описання: в її рамках намагніченість усієї частинки залишається константою за модулем і змінюється лише за напрямком. Саме тому всі обчислення можна здійснювати працюючи лише з таким макроскопічним магнітним моментом, що істотно розширює можливості феноменологічного опису магнітних ефектів як на рівні однієї частинки, так і їх ансамблю. Вагомим чинником широкої вживаності моделі когерентного обертання є експериментальні підтвердження. Так, в роботах [29,30] було показано, що отримані на експерименті петлі гістерезису наночастинок Со та BaFeO, досить точно відтворюються теоретичними розрахунками з використанням зазначеної вище моделі.

Головним внутрішнім чинником впливу на динаміку макроскопічного магнітного моменту магнітної частинки є так звана магнітна анізотропія. У великих зразках існує лише один її тип: магнітокристалічна анізотропія, природа якої походить від спін-орбітальної взаємодії та анізотропії будови кристалічної решітки [25]. У наночастинках вона також присутня і її як основну брали у розгляд Стонер та Вольфарт у своїх роботах [27,28]. Однак, магнітні наночастинки як об'єкти, що мають ознаки мезоскопічних, мають залежність властивостей від розмірних та поверхневих ефектів. З огляду на малий розмір, питома кількість поверхневих спінових магнітних моментів досить суттєва, що призводить до існування поверхневої анізотропії [31]. З іншої сторони, магнітні властивості наночастинки будуть залежати від її форми. Хоча доменні стінки й не утворюються в частинці, її складові все одно намагаються перемагнітити один одного, що виражається в існуванні розмагнічувального поля [32]. Інтенсивність дії такого поля залежить від форми частинки, тому в даному випадку прийнято говорити анізотропію форми. Однак, у теоретичних моделях, що застосувуються до однодоменних наночастинок, також часто розглядають лише магнітокристалічну анізотропію, оскільки вона є домінуючою, а, поверхнева анізотропія часто виражається у ефекті підсилення одноосьової магнітокристалічної анізотропі, як було показано в роботі [33].

Головним зовнішнім чинником у магнітній динаміці є температура. Під дією теплових флуктуацій намагніченість нерухомої наночастинки здійснює рух, що за характером схожий з Броунівським рухом. Аналітичний опис такого явища на базі рівняння Фоккера-Планка був розроблений Брауном у роботі [34]. Роль теплових флуктуацій суттєво різниться залежно від їх інтенсивності, що, в свою чергу, залежить від співвідношення магнітної та теплової енергій. Якщо теплова енергія суттєво більша магнітної, виникає так званий ефект суперпарамагнетизму, коли незалежно від анізотропії всі напрямки намагніченості наночастинки є де-факто, рівноймовірними [35]. Якщо ж співвідношення протилежне: магнітна енергія суттєво більша за теплову, намагніченсіть наночастинки здійснює поодинокі переорієнтації між рівноважними станами, зумовленими анізотропією [36–39], а більшу частину часу намагніченість визначена зазначеною анізотропією. У межовому випадку, можна вважати, що магнітний момент жорстко фіксований, що становить сутність так званої моделі жорсткого диполя (або моделі з вмороженим магнітним моментом), про яку мова піде далі.

Якщо однодоменна феромагнітна частинка закріплена в жорсткій матриці, динамічні ефекти вичерпуються внутрішнім рухом намагніченості. Однак, якщо наночастинка може здійснювати обертальний та поступальний рух як ціле, з однієї сторони, суттєво ускладнюється опис динаміки, з іншої, зростає спектр властивостей, колективних ефектів та практичних застосувань. На практиці це реалізується, коли наночастинки диспергуються у в'язкій рідині, і такий колоїдний розчин називається феромагнітною рідиною, або ферорідиною. Таке середовище одночасно має властивості рідини такі як плинність, поверхневий натяг і властивості твердого тіла: намагніченість та керованість магнітним полем. Інтерес теоретичний та практичний до даного об'єкту є стійким протягом останніх п'ятдесят років. Теоретичні основи як в наближенні неперервного середовища (так звана магнітогідродинаміка), так і з точки зору мікроскопічної природи, добре вивчені та викладені в численних монографіях [40-42] та оглядових статтях [43,44]. Але у частині мікроскопічної теорії продуктивні дослідження тривають ще й досі з огляду нетривіальності задачі, особливо коли мова йде про взаємодію з полями, залежними від часу. Цим питанням детально буде присвячений інший підрозділ.

Та першочерговий інтерес до ферорідин пояснюється широким спектром застосувань. Зокрема, у техніці завдяки сприйнятливості до магнітного поля (змінного або постійного) ферорідини дають можливість керування полем, що знайшло застосування для подачі ракетного палива до камери згорання у стані невагомості. Наявність частинок феромагнетику дає додатковий канал дисипації енергії, що знаходить застосування у різноманітних демферах [45]. Інтенсивність магнітної взаємодії може давати необхідне за міцністю зчеплення тому феромагнітна рідина стала важливим елементом в пристроях механічної трансмісії таких як муфти [46,47]. Перевагою такого рішення є висока стійкість до зносу через неруйнівний характер в'язкого тертя і висока плавність передачі крутного моменту завдяки плинності рідини. Великий потенціал ферорідини та подібні до них структури (наприклад, ферогелі [48,49]) мають як компоненти матеріалів, що поглинають мікрохвилі [50–54]. Такі матеріали є затребуваними, в першу чергу, у військовій галузі для антирадарних та захисних покриттів.

Вражаючий потенціал використання мають ферорідини у біомедицині. Зокрема, ферорідини на базі функціоналізованих наночастинок успішно використовуються для сепарації макромолекул [55–58]. Для цього поверхню феромагнітних наночастинок покривають тим чи іншим шаром-маркером, який здатний вступати в контакт з тією чи іншою макромолекулою або вірусом, а далі наночастинки разом з приєднаними об'єктами сепарації спрямовують магнітним полем до аналізатора або накопичувача. Далі, ферорідини використовуються у нових надчутливих методах діагностики, таких як магнітне контрастування зображень (MRI) під час магнітної томографії [59–62]. Магнітне поле, шо збуджується наночастинками, підвищує роздільну здатність методу томографії на тих ділянках, де сконцентровані інжектовані у досліджувану тканину наночастинки. Це дозволяє використовувати менш потужні томографи, в яких використовується постійне магнітне поле меншої величини. Нарешті, ще один логічний застосунок наночастинок називається адресною доставкою ліків (targeted drug delivery) [59, 62–65]. Керованість наночастинок магнітним полем та можливість у різний спосіб функціоналізувати їх під транспорт тих чи інших сполук, дозволяє доставляти діючу речовину саме до ураженої тканини, що забезпечує одночасно зростання терапевтичного ефекту та зменшення побічних дій.

В методах адресної доставки ліків на основі магнітних наночастинок окремо можна виділити метод магнітної гіпертермії [59,66,67] для терапії ракових захворювань. Завдяки тому, що як носієм, так і джерелом терапевтичного ефекту є самі наночастинки без додаткової функціоналізації. Сама назва передбачає лікування за допомогою підвищеної температури. В свою чергу, температура підвищується шляхом взаємодії наночастинки з зовнішнім періодичним магнітним полем, що зумовлює механічний рух та магнітну динаміку з наступною дисипацією енергії за рахунок тертя, про що докладніше буде пояснено нижче. Ідея досить не нова, але вона стримувалась відсутністю технологій дешевого виробництва наночастинок з необхідними та відтворюваними властивостями. Остання проблема давно вирішена, та широкого вжитку цей метод терапії так і не набув через наявність інших, кращих технологій. Наразі лише одна клініка у світі, MagForce AG, яка у своїх відділеннях у німецьких містах Берлін, Мюнстер, Кельн, Франкфурт здійснює лікування ракових захворювань цим методом. Тим не менше, як видно з аналізу кількості публікацій, інтенсивність досліджень на цю тем лише зростає.

З точки зору фізики, магнітна гіпертермія породжує велике число цікавих завдань, які мають крім практичного і суто академічний інтерес. Зокрема, процес нагрівання частинок пов'язаний з феноменами різної природи. У літературі розглядається три механізми нагрівання наночастинки в змінному магнітному полі [67,68]. 1. Дисипація енергії внаслідок в'язкого тертя під час механічного обертання всієї частинки. Навіть якщо не вважати намагніченсіть наночастинки жорстко фіксованою всередині, за рахунок взаємодії з кристалічною решіткою, рух намагніченості зумовлюватиме рух наночастики як цілого. В свою чергу, рух намагніченості забезпечується зовнішнім полем. В чистому вигляді такий механізм реалізується для досить великих частинок або для досить низьких частот зовнішнього поля. Називається такий механізм нагрівання броунівською релаксацією. 2. Дисипація енергії внаслідок дисипативного руху намагніченості всередині наночастинки. Такий механізм нагрівання називається релаксацією Неєля. У чистому вигляді даний випадок має місце для досить малих частинок або для досить великих частот зовнішнього поля. З. Нагрівання частинки індукційними струмами. Даним механізм добре працює для масивних провідників, однак у випадку наночастинок, які мають великий омічний опір, його внесок мізерний.

# 1.2. Теоретичне описання динаміки ферормагнітної частинки в рідині

Питання потужності, що поглинається під час взаємодії наночастинок із зовнішнім змінним полем у найпростішому, квазірівноважному наближенні, та у припущенні лінійного відгуку системи на зовнішню дію було вдало підсумовано у вже згаданій роботі [68]. Однак, використані теоретичні підходи не були новими навіть у застосуванні проблеми вимушеної динаміки наночастинок з урахуванням термостату: існує низка робіт, де дані питання вже розглядалися, див., наприклад [69–71]. Крім того, такий спрощений підхід ще й досі часто використовується для інтерпретації експериментальних даних. Та незважаючи на простоту і очевидність цієї концепції, її область застосування вузька. Як свідчать численні експерименти [67], в тому числі, проведені нещодавно, [72–79], виникають сильні відхилення від аналітичних прогнозів зазначеного дуже спрощеного наближення. В першу чергу, відмінності випливають з особливостей індивідуальної динаміки, що є результатом пов'язаних механічних і магнітних рухів кожної наночастинки. Іншою причиною відмінностей є утворення структури ферорідини внаслідок взаємодії між наночастинками.

За великим рахунком для достовірного мікроскопічного опису потрібно врахувати як обертання наночастинки як цілого, так і внутрішній рух її намагніченості. Зазначені два види руху мають місце одночасно та, на додачу, істотно впливають один на одного. Окрім того, обидва з них є стохастичними та потребують статистичного опису. На сьогодні можна стверджувати, що істотного прогресу у описанні вимушеної сумісної динаміки під дією зовнішніх полів радіочастоти було досягнуто в першу чергу у детерміністичному наближенні. Так, в роботах [80–84] розвивалась сумісна система рівнянь руху, побудована на базі закону збереження повного моменту імпульсу, а факт обертання наночастику як цілого модифікував релаксаційний доданок у рівнянні, подібному до рівняння Ландау-Ліфшиця, що відповідає за магнітну динаміку. Врахування же теплових флуктуацій для сумісної динаміки наразі знаходиться лише на початковій стадії [81,85,86], оскільки відкритим залишається питання про можливу кореляцію шумів, що відповідають за стохастичні компоненти руху намагніченості та частинки як цілого.

Саме тому для дослідження впливу теплових та колективних ефектів варто вибрати модель максимально просту – модель з вмороженим магінтним моментом, в межах якої передбачається, що намагніченість частинок буде закріплена в кристалічній решітці сильним полем анізотропії. Останній підхід дуже плідний, добре відповідає реальним кейсам, наприклад, для наночастинок радіуса більше 20 нм і не дуже високих частот ( $10^3 - 10^6$  Гц) поля [67]. Цікаво відзначити, що в нещодавніх дослідженнях зв'язаної динаміки [85] було отримано велику кількість результатів саме для граничного випадку жорсткого диполя.

#### 1.2.1. Динаміка частинки з вмороженим моментом: підходи та моделі

До задачі опису динаміки частинки з вмороженим моментом в рідині під дією зовнішніх полів різні дослідники та дослідницькі групи звертались досить часто протягом останніх десятиліть. Було сформовано декілька методологій, які часто перетинаються та доповнюють одна одну. Найзагальніший підхід був викладений в роботі [87]. Для частинки з односьовою симетрією, для якою головні моменти інерції позначені як  $I_1 = I_2$  та  $I_3$ . Якщо не враховувати трансляційні ступені вільності, Лагранжиан L може бути записаний з використанням кутів Ейлера в інтерпретації Гольдштейна [88] як узагальнених координат.

$$L = \frac{I_1}{2} (\dot{\theta}^2 + \dot{\phi}^2 \sin^2 \theta) + \frac{I_3}{2} (\dot{\psi} + \dot{\phi} \cos \theta)^2 - V(\theta, \phi), \qquad (1.1)$$

де  $\theta$  – полярний кут наночастинки,  $\phi$  – азимутальний кут наночастинки,  $\psi$  – кут обертання наночастинки навколо власної вісі симетрії, та, нарешті,  $V(\theta, \phi)$  – деякий зовнішній потенціал.

Частинка буде взаємодіяти з рідиною завдяки дисипативному та випадковому моментам. Обидва вони не входять у Лагранжиан, але є включеними в узагальнене рівняння Лагранжа-Ейлера у вигляді

$$\frac{d}{dt}\frac{\partial L}{\partial \dot{v}_i^2} - \frac{\partial L}{\partial v_i^2} = \mathcal{U}_i,\tag{1.2}$$

де  $v_i = \theta, \phi, \psi$ , а неконсервативний момент подається у вигляді

$$\mathcal{U}_i = -\frac{\partial \mathcal{F}}{\partial \dot{\upsilon}_i} + \Gamma_i(t), \qquad (1.3)$$

де  $\mathcal{F}$  є дисипаційною функцією Реєля [88] і записується у вигляді

$$\mathcal{F} = 0.5\lambda (\dot{\theta}^2 + \dot{\phi}^2 \sin^2 \theta) + 0.5\lambda' (\dot{\psi} + \dot{\phi} \cos^2 \theta)^2, \qquad (1.4)$$

а  $\Gamma_i(t)$  – випадкові обертові моменти, зумовлені взаємодією з термостатом. Константи дисипації  $\lambda$  та  $\lambda'$  можуть бути різними, оскільки  $\lambda$  відповідає за обертання перпендикулярно вісі симетрії, а  $\lambda'$  – вздовж цієї вісі. Підстановкою виразів (1.1), (1.3), (1.4) до (1.2) можна отримати систему рівнянь для наночастинки,
що обертається

$$I_1(\ddot{\theta} - \dot{\phi}^2 \sin \theta \cos \theta) + I_3 \dot{\phi}(\dot{\psi} + \dot{\phi} \cos \theta) \sin \theta + \lambda \dot{\theta} + V_\theta = \Gamma_\theta, \quad (1.5a)$$

$$I_{1}(\dot{\phi}\sin^{2}\theta + 2\dot{\phi}\dot{\theta}\sin\theta\cos\theta) + I_{3}\cos\theta\frac{d}{dt}(\dot{\psi} + \dot{\phi}\cos\theta) - I_{3}(\dot{\psi} + \dot{\phi}\cos\theta)\dot{\theta}\sin\theta + \lambda\dot{\phi}\sin^{2}\theta + V_{\phi} = \Gamma_{\phi}, \quad (1.5b)$$

$$I_3(\dot{\psi} + \dot{\phi}\cos\theta) + \lambda'(\dot{\psi} + \dot{\phi}\cos\theta) = \Gamma_{\psi}, \quad (1.5c)$$

де  $V_{\theta} = \partial V / \partial \theta$ ,  $V_{\phi} = \partial V / \partial \phi$ . Вираз  $(\dot{\psi} + \dot{\phi} \cos \theta)$  тут подає компоненту кутової швидкості  $\boldsymbol{\omega}$ , що відповідає за обертання навколо вісі симетрії частинки.

Описаний загальний підхід має ті недоліки, що обертові моменти не виписані в явному вигляді. Це потребує додатково конкретизувати їх для випадку взаємодії жорсткого диполя із зовнішнім магнітним полем, з в'язким середовищем та термостатом. Крім того, для чисельного аналізу, особливо у стохастичному випадку, систему рівнянь потрібно звести до рівнянь першого порядку в яких похідні будуть ліворуч від знака рівності. Тому слід звернути увагу на більш прості підходи, які відразу оперують з конкретними виразами для взаємодії. Якщо вважати, що наночастинка є сферичною, має однорідну густину, і момент інерції I, то у векторному вигляді рівняння руху може бути подане відповідно роботі Хола та Бузенберга [89].

Момент сили тертя під час обертання такої частинки тут подається у вигляді  $8\eta\pi R^3(\frac{1}{2}\boldsymbol{\omega}_0 - \boldsymbol{\omega})$ , де  $\eta$  – в'язкість рідини, R – радіус наночастинки з вмороженим магінтним моментом,  $\boldsymbol{\omega}_0$  – складова, що враховує обертання самої рідини в процесі обертання частинки, якою дуже часто нехтують під час розширення моделі на випадок врахування термостату або колективних ефектів, зумовлених диполь-дипольною взаємодією. Момент, зумовлений зовнішнім магнітним полем  $\mathbf{H} = \mathbf{H}(t)$  визначається як  $\mathbf{m} \times \mathbf{H}$ , де  $\mathbf{m}$  – магнітний момент диполя, а символ × означає векторний добуток. Тоді використовуючи основне рівняння динаміки обертального руху, або рівняння балансу моментів, яке є аналогом другого закону Ньютона для обертового руху, можна записати

$$I\frac{d\boldsymbol{\omega}}{dt} = 8\eta\pi R^3 \left(\frac{1}{2}\boldsymbol{\omega}_0 - \boldsymbol{\omega}\right) + \mathbf{m} \times \mathbf{H}.$$
 (1.6)

Останнє рівняння доповнюється кінематичним рівнянням, або умовою обертання жорсткого твердого тіла у вигляді

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = \mathbf{\omega} \times \mathbf{m},\tag{1.7}$$

і у підсумку система рівнянь (1.6), (1.7) дозволяє як аналітичне розв'язання для окремих випадків, так і чисельне моделювання у детерміністичному наближенні. Наприклад, коли знехтувати інерційним доданком, що часто здійснюється в таких випадках через малий розмір наночастинок, які моделюються жорсткими диполями, та у припущенні, що поле, яке діє на частнику є постійним, рівняння руху можна записати системою диференціальних рівнянь

$$\frac{d\theta}{d\tau} = 4\eta\pi\omega_0 R^3/mH - \sin\psi\sin\theta\csc\phi, \qquad (1.8a)$$

$$\frac{d\phi}{d\tau} = \sin\psi\cos\theta\cos\phi - \cos\psi\sin\phi.$$
(1.8b)

У даному випадку  $\psi$  є кутом між векторами **H** та  $\boldsymbol{\omega}_0$ , а  $\tau = mHt/4\eta\pi\boldsymbol{\omega}_0R^3$ . У випадку, коли обертання навколо магнітного моменту не становить інтересу, можна припустити, що sin  $\psi = 0$ , і рівняння (1.8) допускають пряме інтегрування. Отриманий розв'язок має простий вигляд

$$\theta = 0.5\omega_0 t + C_1, \tag{1.9a}$$

$$\phi = 2 \arctan \left[ C_2 \exp(-mHt/4\eta\pi\omega_0 R^3) \right].$$
(1.9b)

Слід зауважити, що описаний підхід дозволяє просте узагальнення на випадок взаємодії з термостатом.

# 1.2.2. Статистичний підхід до опису поведнінки частинки з вмороженим моментом у рідині

Відповідно до [44] статистичні властивості обертового руху частинки з вмороженим моментом описуються залежною від часу функцією розподілу  $P(\mathbf{u}, t)$ , де  $\mathbf{u} = \mathbf{m}/m$ . Дана функція повинна задовольняти відповідному рівнянню неперервності.

$$\frac{\partial P}{\partial t} + \operatorname{div}\left(W\frac{d\mathbf{u}}{dt}\right) = 0 \tag{1.10}$$

Зауважимо, що додатковою умовою тут є умова нормування  $\int P(\mathbf{u}, t) d\mathbf{u} = 1$ . Для встановлення явного вигляду рівняння для  $P(\mathbf{u}, t)$ , потрібно використати рівняння руху (1.6), (1.7), яке для випадку малих частинок, коли моментом інерції можна знехтувати, набуває спрощеного вигляду

$$\frac{d\mathbf{u}}{dt} = -\frac{mH}{6\eta V} (\mathbf{u} \times (\mathbf{u} \times \mathbf{h})), \qquad (1.11)$$

де  $\mathbf{h} = \mathbf{H}/H$ , V – об'єм наночастинки. Із врахуванням виразу для енергії  $W = -mH\mathbf{u}\mathbf{h}$  останній вираз можна подати в операторному вигляді

$$\frac{d\mathbf{u}}{dt} = \frac{1}{6\eta V} (\mathbf{u} \times \widehat{\mathbf{J}}W), \qquad (1.12)$$

де

$$\widehat{\mathbf{J}} = \left(\mathbf{u} \times \frac{\partial}{\partial \mathbf{u}}\right). \tag{1.13}$$

Врахування взаємодії з термостатом виражається через доданок до енергії, що відповідає ентропії у статистичній інтерпретації

$$W \Rightarrow W + k_B T \ln P, \tag{1.14}$$

де  $k_B$  – стала Больцмана, T – термодинамічна температура. Тоді рівняння (1.13) переписується як

$$\frac{d\mathbf{u}}{dt} = \frac{1}{2\tau_B} (\mathbf{u} \times \widehat{\mathbf{J}}) \left( \frac{W}{k_B T} + \ln P \right), \qquad (1.15)$$

де  $\tau_B = 2V\eta/k_BT$  – час релаксації Броуна (див. деталі [43]). У рівноважних умовах розв'язок рівняння (1.15) має задовольняти розподілу Больцмана

$$P_0(\mathbf{u}) = Z_0^{-1} \exp\left(-W/k_B T\right), \quad Z_0 = \int \exp\left(-W/k_B T\right) d\mathbf{u}$$
 (1.16)

Можливість виконання останніх умов автори трактують як підтвердження справедливості заміни (1.14). Далі рівняння неперервності (1.10) трансформує-

ться до більш конкретного вигляду

$$\operatorname{Div}\left(P\frac{d\mathbf{u}}{dt}\right) \equiv \frac{\partial}{\partial \mathbf{u}}\left(P\frac{d\mathbf{u}}{dt}\right) = \frac{1}{2\tau_B}\frac{\partial}{\partial \mathbf{u}}\left[\left(\mathbf{u} \times P\widehat{\mathbf{J}}\right)\left(\frac{W}{k_BT} + \ln P\right)\right]$$
$$= \frac{1}{2\tau_B}\left(\frac{\partial}{\partial \mathbf{u}} \times \mathbf{u}\right)P\widehat{\mathbf{J}}\left(\frac{W}{k_BT} + \ln P\right), \qquad (1.17)$$

де було використано циклічну перестановку елементів змішаного добутку та властивості диференціальних операторів. У кінцевому підсумку було записано

$$\operatorname{Div}\left(P\frac{d\mathbf{u}}{dt}\right) = \frac{1}{2\tau_B}\widehat{\mathbf{J}}P\widehat{\mathbf{J}}\left(\frac{W}{k_BT} + \ln P\right). \tag{1.18}$$

або з врахуванням того, що  $\frac{\partial}{\partial \mathbf{u}}(P\frac{d\mathbf{u}}{dt}) = \frac{\partial P}{\partial \mathbf{u}}\frac{d\mathbf{u}}{dt} + P\frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial \mathbf{u}\partial t} = \frac{\partial P}{\partial t}$ 

$$2\tau_B \frac{\partial P}{\partial t} = \widehat{\mathbf{J}} P \widehat{\mathbf{J}} \left( \frac{W}{k_B T} + \ln P \right).$$
(1.19)

Далі зазначається, що під час розкриття диференціальних операторів магнітна енергія поводить себе аналогічно до моменту сили, що діє на наночастинку зі сторони поля, остаточний векторний вигляд рівняння для щільності ймовірності записується як

$$2\tau_B \frac{\partial P}{\partial t} = \widehat{\mathbf{J}} P \widehat{\mathbf{J}} [\ln P - \kappa (\mathbf{u} \times \mathbf{h})]$$
(1.20)

де  $\kappa = mH/k_BT$  – співвідношення між магнітною та тепловою енергією, величина, що буде застосовуватися далі. Дане рівняння в літературі називають рівнянням Фоккера-Планка, а наведений спосіб його отримання є не єдиним. У сферичних координатах останнє рівняння подається як

$$2\tau_B \sin \theta \frac{\partial P}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \theta} \left[ \sin \theta \left( \frac{\partial P}{\partial \theta} + \kappa \sin \theta P \right) \right] + \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial^2 P}{\partial \phi^2}.$$
 (1.21)

Стаціонарним розв'язком рівняння (1.20) є

$$P_0 = \frac{\kappa}{4\pi \sinh \kappa} \exp(\kappa x), \quad x = (\mathbf{u} \cdot \mathbf{h}) = \cos \theta.$$
(1.22)

Відзначимо, що статистичний підхід вимагає застосування більш складних аналітичних та чисельних методів для отримання результатів. Тому відомі випадки інтерпретації взаємодії з термостатом за допомогою концепції ефективних сил, коли результуюче рівняння руху є детерміністичним та не містить стохастичних компонентів. Вигляд такого рівняння установлюється з аналізу властивостей наближених розв'язків рівняння Фоккера-Планка. Такий підхід є наближеним та має обмежену область застосування, однак він зустрічається у літературі. Так, зокрема такі наближені детерміністичні рівняння були отримані, наприклад, у роботах [90,91] і використовувалися для чисельних досліджень порівняно нещодавно [92,93].

# 1.3. Взаємодія частинки з вмороженим моментом із зовнішнім полем

### 1.3.1. Квазірівноважне наближення

Достатньо простий опис проблеми відгуку феромагнітної наночастинки, завислої у рідині на змінне зовнішнє поле можна отримати в рамках квазістаціонарного наближення, коли можна вважати, що магнітна енергія багато менша за теплову і користуватися висновками, отриманими для випадку теплової рівноваги [68]. У адіабатичному наближенні, коли нехтується теплообміном із зовнішнім середовищем, вся робота  $\delta A = \mathbf{H} d\mathbf{m}$  перетворюється на приріст внутрішньої енергії. За один цикл магнітний момент та зовнішнє поле повторюють свої значення. Тому користуючись інтегруванням частинами, зміни внутрішньої енергії можна подати як

$$\Delta W = -\oint \mathbf{m}d\mathbf{H}.\tag{1.23}$$

Якщо зовнішнє поле змінюється періодично  $\mathbf{H} = H_0 \cos \Omega t = \operatorname{Re}[H_0 e^{i\Omega t}]$ , намагніченість зручно подати за допомогою концепції комплексної магінтної сприйнятливості  $\chi = \chi' - i\chi''$ . Тут  $\chi'$  – так звана синфазна компонента, а  $\chi''$ – протифазна компонента сприйнятливості. Результуюча намагніченість при цьому складатиме  $\mathbf{m}(t) = \operatorname{Re}[\chi H_0 e^{i\Omega t}] = H_0(\chi' \cos \Omega t - \chi'' \sin \Omega t)$ . Це дозволяє переписати вираз 1.23 як

$$\Delta W = 2\chi'' H_0^2 \int_0^{2\pi/\Omega} \sin^2 \Omega t dt, \qquad (1.24)$$

з якого вираз для потужності втрат набуває простого вигляду

$$Q = 0.5\chi'' H_0^2 \Omega, (1.25)$$

Явний вигляд уявної частини комплексної магнітної сприйнятливості  $\chi''$  був встановлений з релаксаційного рівняння послуговуючись поняттям середнього часу релаксації  $\tau_R$ 

$$\chi'' = \chi_0 \frac{\Omega \tau_R}{1 + (\Omega \tau_R)^2},\tag{1.26}$$

де час релаксації розраховується за допомогою відомих часів релаксації Броуна  $\tau_B$  та Неєля  $\tau_N$  (зміст даних величин та деталі методики розрахунку добре описані у [43])

$$\frac{1}{\tau_R} = \frac{1}{\tau_B} + \frac{1}{\tau_N}.$$
 (1.27)

Варто зауважити, що величина  $\tau_B$  відповідає за обертання наночастинки як цілого, а величина  $\tau_N$  – за обертання магнітного моменту всередині наночастинки. В квазірівноважному наближенні формули для розрахунку цих величин відомі. Однак, слід згадати, даний підхід дає обґрунтовані результати лише у випадку коли основною взаємодією є взаємодія наночастинки з термостатом. Це обмеження є досить суттєвим, оскільки, як буде показано далі, для високоанізотропних наночастинок радіусом 10-15 нм, які часто застосовуються на практиці, магнітна енергія вже є порівнюваною з тепловою.

# 1.3.2. Випадок довільного співвідношення між магнітною та тепловою енергіями

У загальному випадку аналіз потребує встановлення статистичних властивостей обертових координат наночастинки за допомогою рівняння Фоккера-Планка. Для циркулярно-поляризованого поля у вигляді  $\mathbf{H} = H_0(\cos \Omega t, \sin \Omega t, 0)$  такий аналіз був здійснений у роботах [94, 95]. Особливістю підходу було використання системи координат, що обертається разом із зовнішнім полем. Магнітна енергія в цьому випадку записувалася як  $W = -mH_0 \sin \theta \cos \psi$ , де  $\psi = \phi - \Omega t$ . Статистичні властивості наночастинки описуються залежною від часу густиною ймовірності  $P(\mathbf{u}, t)$ . Функція  $P(\mathbf{u}, t)$ є розв'язком відповідного рівняння Фоккера-Планка, аналогічному до (1.19), що для систем координат, яка обертається разом з полем, має вигляд

$$2\tau_B \left[ \frac{\partial}{\partial t} - (\Omega \widehat{\mathbf{J}}) \right] P = \widehat{\mathbf{J}} P \widehat{\mathbf{J}} \left( \frac{W}{k_B T} + \ln P \right).$$
(1.28)

Стаціонарний розподіл, що відповідає рівнянню (1.28) шукається у вигляді ряду

$$P(\theta, \psi) = \sum_{\ell=0}^{\infty} \sum_{k=-\ell}^{k=\ell} b_{\ell,k} Y_{\ell,k}(\theta, \psi).$$
(1.29)

відносно сферичних гармонічних функцій  $Y_{\ell,k}(\theta,\psi)$ 

$$Y_{\ell,k}(\theta,\psi) = (-1)^k \sqrt{\frac{(2\ell+1)(\ell-k)!}{4\pi(\ell+k)!}} \mathcal{P}_{\ell}^k(\cos\theta) e^{ik\psi},$$
(1.30)

за умови, що  $-\ell \leq k \leq \ell, Y_{\ell,k}^* = (-1)^k Y_{\ell,-k}$ . Підстановкою виразів (1.30) (1.30) у рівняння (1.28) дозволяє отримати нескінченну множину рекурентних алгебраїчних рівнянь

$$- 2ik\Omega\tau_{B}b_{\ell,k} + \ell(\ell+1)b_{\ell,k} = \frac{\kappa}{2} \Big[ (\ell+1)\sqrt{\frac{(\ell-k-1)(\ell-k)}{(2\ell-1)(2\ell+1)}} b_{\ell-1,k+1} + \ell\sqrt{\frac{(\ell+k+2)(\ell+k+1)}{(2\ell+1)(2\ell+3)}} b_{\ell+1,k+1} - (\ell+1)\sqrt{\frac{(\ell+k-1)(\ell+k)}{(2\ell-1)(2\ell+1)}} b_{\ell-1,k-1} - \ell\sqrt{\frac{(\ell-k+2)(\ell-k+1)}{(2\ell+1)(2\ell+3)}} b_{\ell+1,k-1} \Big]$$

$$(1.31)$$

У подальшому запропоновано розв'язувати ці рівняння чисельно. Однак найбільший інтерес має коефіцієнт  $b_{1,1}$ , який визначає дві проекції магнітного моменту: проекцію на напрям поля  $e_{||}$ , та на перпендикуляр до нього  $e_{\perp}$  як

$$e_{\parallel} = \langle \sin \theta \cos \psi \rangle = -\sqrt{\frac{8\pi}{3}} \operatorname{Re} b_{1,1},$$
 (1.32a)

$$e_{\perp} = \langle \sin \theta \sin \psi \rangle = \sqrt{\frac{8\pi}{3}} \mathrm{Im} b_{1,1}.$$
 (1.32b)

Для випадку великих температур, або малих амплітуд поля ( $\kappa \ll 1$ ) середнє значення проекції одиничного вектора магнітного моменту на площину поляризації поля визначається як

$$e = e_{\parallel} - ie_{\perp} = \frac{\kappa}{3} \frac{1}{1 + i\Omega\tau_B} \tag{1.33}$$

$$e_{||} = \Omega \tau_{\perp} L(\kappa), \tag{1.34}$$

де  $L(\kappa) = \coth(\kappa) - 1/\kappa$  – функція Ланжевена, а  $\tau_{\perp}$  час релаксації за умови прикладання постійного поля (деталі знаходження подаються в [96]). Тут же пропонується спрощений вираз для обчислення цього часу релаксації

$$\tau_{\perp} = \frac{2\kappa L(\kappa)}{\kappa - L(\kappa)} \tau_B. \tag{1.35}$$

Варто зауважити, що подібний підхід також застосовувався у роботах [44,97] у випадку дії лінійно-поляризованого поля, і функція густини ймовірності також знаходилась у вигляді ряду, зі зведенням задачі до пошуку коефіцієнтів як розв'язку системи алгебраїчних рівнянь типу (1.32).

Потужність втрат під час описаного руху описується з використанням означення приросту енергії (1.23)

$$Q = 2\pi\Omega m H_0 \langle \sin\theta \sin\psi \rangle / \rho = 2\pi\Omega m H_0 e_\perp / \rho, \qquad (1.36)$$

де  $\rho$  – обємна густина матеріалу наночастинки. Однак, у подальшому даний вираз перемасштабовується та питома потужність втрат асоціюється з виразом  $Q = \Omega \kappa \tau_B e_{\perp}$ .

## 1.4. Врахування дипольної взаємодії

## 1.4.1. Результати аналітичних наближень

Внаслідок далекодіючого характеру міжчастинкової дипольної взаємодії, дипольні поля є другим фактором, що визначає відгук ферорідини на зовнішні поля. Отже, ми стикаємося з необхідністю розв'язання проблеми багатьох тіл. З цією метою використовуються кілька наближених підходів, а загального развязку при цьому не існує. Переважна більшість аналітичних методів ґрунтуються на різних модифікаціях методу середнього поля, а опис відгуку на зовнішнє поле проводиться в межах концепції магнітної сприйнятливості  $\chi = \partial \mathbf{m}/\partial \mathbf{H}$  [98–102], див. більше результатів у огляді [103]. Всі зазначені методи витікають з ідеї, запропонованої ще Вейєсом. Відповідно моделі, для простоти обчислення, наночастинка (жорсткий сферичний диполь) розглядалась розміщеною в сферичну порожнину, оточену однорідним середовищем з намагніченістю  $\mathbf{M}$ . У цьому випадку локальне поле має перевизначатися як  $\mathbf{H} \Rightarrow \mathbf{H} + \mathbf{M}/3$ . Тоді ввівши нову змінну  $\kappa' = m(H + M/3)/k_BT$  результуюча намагніченість системи заданою моделлю подається як

$$M = M_0 L(\kappa'), \tag{1.37}$$

де  $M_0$  – насичене значення намагніченості, а L(x) – визначена раніше у поясненнях до (1.34) функція Ланжевена. Магнітна сприйнятливість відповідно до (1.37) має вигляд

$$\chi = \frac{\partial M}{\partial H}\Big|_{H=0} = \frac{\chi_L}{1 - \chi_L/3},\tag{1.38}$$

де  $\chi_L$ , в свою чергу визначається як –

$$\chi_L = \frac{\partial M_L}{\partial H}\Big|_{H=0} = \frac{1}{3} \frac{M_0 m}{k_B T},\tag{1.39}$$

Аналогічно для випадку дисперсного магнітного середовища, що взаємодіє між собою можна застосувати підхід, який був запропонований Онсагером [104] для поляризованих молекул. Тут вважалось, що сферичні молекули займають порожнини у середовищі зі сприйнятливістю  $\chi$ . Локальне поле, що діє на кожну молекулу — це сума поля порожнини плюс поле реакції, що паралельне фактичному загальному (постійному та індукованому) моменту молекули. В результаті установлюється зв'язок  $\chi_L$  та  $\chi$ 

$$\chi_L = \frac{\chi(3+2\chi)}{3(1+\chi)}.$$
(1.40)

Для невеликих значень  $\chi_L$  вирази (1.37) та (1.40) можна подати у вигляді ряду

$$\chi = \chi_L + \frac{1}{3}\chi_L^2 \pm \frac{1}{9}\chi_L^3 + \dots, \qquad (1.41)$$

де знак плюс відповідає моделі Вейєса, а мінус — моделі Онсагера. Велика кількість подальших досліджень часто мали результатом уточнену формулу для пошуку початкової сприйнятливості. Наприклад, в роботі [100] запропонований вираз  $\chi = \chi_L (1 + \frac{4\pi}{3}\chi_L)$ .

Спроба врахувати кореляції напрямків магнітних моментів в геометрично ідеалізованих наближеннях була здійснена в межах так званої моделі hypernetted chain (HNC). Тут використовується складний аналітичний апарат кореляційних функцій з використанням співвідношення Орнштейна-Церніке (Ornstein–Zernike) [105]. Подальший аналіз у так званому середньо-сферичному наближенні (mean spherical approximation) [106] дозволяє отримувати алгебраїчні рівняння для початкової сприйнятливості у вигляді

$$\chi = \frac{\chi_L}{q(-x)}, \chi_L = q(2x) - q(-x), q(x) = \frac{(1+2x)^2}{(1-x)^4}, \tag{1.42}$$

На жаль, вищенаведений підхід не враховує належним чином кореляції напрямків магнітних моментів найближчих сусідніх наночастинок і можливе формування структури, що обговорюється в [107–109]. Крім того, під час дії періодичного зовнішнього поля важко застосувати підхід середнього поля. Наприклад, спостережуване на численних експериментах зростання квазістатичної сприйнятливості, зумовлене взаємодією, не означає збільшення уявної частини комплексної сприйнятливості, що підтверджується численними експериментами з визначення питомого поглинання [72–77,77–79]. Тому, для коректного обчислення розподілу локальних дипольних полів доцільно використовувати чисельне моделювання.

#### 1.4.2. Потенціали взаємодії

Потенціальна енергія двох диполів з магнітними моментами  $\mathbf{m}_j$  та  $\mathbf{m}_i$ , що знаходятся один від одного на відстані  $\mathbf{r}_{ij}$ , визначається відомим співвідношенням

$$V_{ij}^d = \frac{3(\mathbf{m}_i \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{m}_j \mathbf{r}_{ij} - \mathbf{m}_i \mathbf{m}_j)}{r_{ij}^3},\tag{1.43}$$

Окрім диполь-дипольної в літературі зустрічається низка короткодіючих потенціалів. Наприклад, потенціал ван дер Ваальса [40]

$$V_{ij}^{vdW} = -\frac{A'}{6} \left[ \frac{2}{l_r^2 + 4l_r} + \frac{2}{(l_r + 2)^2} + \ln \frac{l_r^2 + 4l_r}{(l_r + 2)^2} \right],$$
(1.44)

де  $4l_r = 2r_{ij}/D_{core} - 2$  – відстань між поверхнями частинок, виміряна в їх діаметрах  $D_{core}$ , A' – константа взаємодії.

До взаємодії ван дер Ваальса додається стеричне відштовхування, зумовлене покриттям наночастинок (т. з. сурфактантом), що попереджує їх агрегацію

$$V_{ij}^{s} = -\frac{\pi D_{core} \sigma_{p} k_{B} T}{2} \left[ 2 - \frac{l_{r} + 2}{\Delta_{D}} \ln\left(\frac{1 + \Delta_{D}}{1 + l_{r}/2}\right) - \frac{l_{r}}{\Delta_{D}} \right],$$
(1.45)

де  $\Delta_D = 2\delta_s/D_{core}$  – відносна товщина шару сурфактанта ( $\delta_s$  – його абсолютна товщина),  $\sigma_p$  – поверхнева густина сурфактанта.

Іншим способом опису відштовхування у електрично стабілізованій рідині є потенціал Дебая

$$V_{ij}^D = -\frac{Q_{eff}^2}{4\pi\varepsilon' r_{ij}} \exp\frac{-(r_{ij} - D_{core})}{\lambda_d},$$
(1.46)

де  $Q_{eff}$  – ефективний заряд наночастинок,  $\varepsilon'$  – діелектрична проникність,  $\lambda_d$  – характерна дебаївська довжина.

Нарешті, найбільш розповсюджений та простий у розрахунках ролі сурфактанта в міжчастинковій взаємодії є потенціал Ленарда-Джонса

$$V_{ij}^{LD} = -4V_0 \left[ \left( \frac{D_0}{r_{ij}} \right)^{12} - \left( \frac{D_0}{r_{ij}} \right)^6 \right].$$
(1.47)

тут  $V_0$  – феноменологічна константа взаємодії,  $D_0$  – характерна відстань, на якій потенціал обертається на нуль. Даний потенціал гарно описує відштовхування під час зближення наночастинок, і дещо збільшує притягання між ними, якщо відстань більша за величину  $D_0$ .

Як правило, для реального моделювання застосовуються потенціали (1.43) та (1.47), які визначають основні взаємодії.

#### 1.4.3. Метод Монте-Карло

Найпростішим в реалізації метод, який може дозволити розраховувати певні характеристики, є метод Монте-Карло [110]. У даному випадку, під методом Монте-Карло слід розуміти ітераційну процедуру, на кожному кроці якої випадково змінюється стан системи, а ймовірність прийняття нового стану пропорційна до  $\exp[\Delta W_i/(k_B T)]$  де  $\Delta W_i$  – зміна стану i – ої частинки. Зазначений підхід дозволяє знаходити рівноважні характеристики, але у випадку дії зовнішнього поля його застосованість дуже обмежена. Однак, наприкінці 90-х та початку 2000-х даний метод широко використовувався для вивчення спінових систем та систем наночастинок, зафіксованих у твердій матриці в рамках реалізації класичних моделей Ізінга та Гейзенберга [111–117].

Основним недоліком методу Монте-Карло є відсутність відповідності одного кроку Монте-Карло реальному часовому проміжку, для подолання якого пропонувалися різноманітні підходи. Одним з перших варто згадати підхід Канаі (Kanai) та Чарапа (Charap) [118] під час вивчення магнітної динаміки ансамблю частинок з одноосьовою анізотропією. Теоретична основа підходу полягає в наступному. Магнітні моменти всіх частинок знаходяться в локальних дипольних полях, отже, кожному магнітному моменту відповідає індивідуальне значення величини потенційного бар'єру для переорієнтації. Середній час життя  $\tau_i$  магнітного моменту вздовж напрямку, що відповідає поточному квазірівноважному стану системи, визначається законом Арреніуса-Нееля  $au_i = f_0^{-1} \exp[\Delta W_i/(k_B T)]$ , де  $f_0$  – деяка характерна частота системи. Протягом певного малого у порівнянні із середнім значенням  $au_i$  часового інтервалу  $\Delta t$ , коли кількість переорієнтацій магнітних моментів багато менша загального числа N частинок в ансамблі, переоріентації розглядались статистично незалежними. Згідно з теоремою множення ймовірностей, ймовірність переходу системи в інший квазірівноважний стан в цьому випадку дорівнює  $1 - \exp(-\Delta t Z)$ , де  $Z = \sum_{i}^{N} \tau_{i}^{-1}$ . Наступним етапом є генерування випадкового числа P' від 0 до 1, якому буде відповідати проміжок часу  $\Delta t = -\ln(P')/Z$ . Переорієнтація напрямку частинки, що може відбутися за  $\Delta t$ , приймається при цьому з ймовірністю  $\tau_i^{-1}/Z$ . Здійснюючи циклічно вищеописану процедуру задану кількість разів, автори отримували часову еволюцію системи.

Важливим моментом описаного алгоритму є те, що в деякому часовому інтервалі систему можна розглядати як сукупність невзаємодіючих частинок, що знаходяться під дією локальних полів, які незмінні на даному інтервалі. Однак, даний метод має два недоліки: по-перше, не враховується залежність  $f_0$  від величини локального поля, по-друге, довільність вибору тимчасового інтервалу  $\Delta t$  не відображає відмінність в темпах релаксації залежно від етапу релаксації. Ці моменти є принциповими з точки зору перенесення методології на випадок наночастинок, завислих у рідині. У ході подальших пошуків групою авторів [119, 120] був запропонований так званий гібридний метод, який поєднує в собі пряме інтегрування системи стохастичних рівнянь руху і метод Монте-Карло. Автори виходили з того, що інформація про реальні траєкторії досягнення рівноваги є вторинною, для опису релаксації системи, можна застосовувати системи лінеаризованих рівнянь Ландау-Ліфшиця, якими описується динаміка магнітних моментів. При цьому динамічні кореляції напрямків магнітних моментів враховувалися в множниках перед членами, що відповідають за загасання. Поточні прирощення координат кожного магнітного моменту перебували з урахуванням як випадковості дії ефективного теплового поля на систему, так і динамічних кореляцій між напрямками моментів. Рішення про прийняття або відхилення тих чи інших змін здійснюється відповідно до критеріїв методу Монте-Карло, описаних вище. Підхід не є універсальним, та не дозволяє простого перенесення на випадок моделювання завислих у рідині феромагнітних наночастинок.

Зв'язок між кроком Монте-Карло і конкретними часовими інтервалами було також запропоновано в роботах [121, 122]. Цей зв'язок встановлено виходячи з порівняння такої статистичної характеристики як дисперсія для вектора магнітного моменту, що здійснює флуктуаційний рух навколо рівноважного положення. Остання величина фактично задається конкретним алгоритмом моделювання. Подальша процедура чисельного моделювання аналогічна описаній вище, і ймовірності розраховуються у відповідності до величини  $\exp[-\Delta W_i/(k_BT)]$ . Далі автори використовують відому лінійну залежність дисперсії від часу [123,124], конкретний вигляд якої установлюється з розв'язку лінеаризованого рівняння Ландау-Ліфшиця.

Найбільш переконливою спробою поставити у відповідність кроку Монте-Карло був підхід, заснований на пошуку середнього часу досягнення випадковим процесом заданого рівня, та пов'язаної з ним щільності ймовірності переорієнтації між двома рівноважними станами [38]. Ця щільність ймовірності повязана з середньою кількістю переорієнтацій за вибраний проміжок часу через різничну схему кінетичного рівняння. За вибраний невеликий проміжок часу в ансамблі може відбутися декілька переорієнтацій. Для стабільної роботи методу треба підбирати цей проміжок таким чином, щоб кількість переорієнтацій була багато меншою за розмір ансамблю, щоб не вносити за один крок надто значних змін у систему. Далі важливими є два зауваження. По перше, щільність ймовірності переорієнтації магнітного моменту буде визначатися величиною локального дипольного поля у місці знаходження наночастинки. По друге, вибір конкретних наночастинок, намагніченість яких змінюється, відбувається у відповідності до ймовірності змін: більш ймовірні зміни більш вірогідні, що і є предметом випадкових випробувань в даному методі.

Звісно, аналогічний підходи можна розвинути стосовно ансамблів феромагнітних частинок простим додаванням поступальної степені вільності та взаємодії, зумовленої сурфактантом у вигляді (1.45) або (1.47). Перші роботи, де це було реалізовано почали з'являтися ще разом з першими персональними комп'ютерами [125]. Звісно, тоді мова не могла йти про моделювання великих ансамблів, та для спрощення застосовувалися двовимірні моделі. Проте, первинні дані про кластерізацію та початкову магнітну сприйнятливість стало можливим отримувати з чисельного експерименту. Зокрема вдалося побачити, що первинна крива намагнічування в значній мірі модифікується взаємодією та можливі значні відхилення від закону Ланжевена, навіть з поправкою на спробу врахувати взаємодію методом середнього поля. Причиною тому є різна форма кластерів. Далі, розвинута методика була узагальнена на випадок полідисперсних ферорідин [126], де було показано, що різний розмір сприяє утворенню більш стійких кластерів, що призводить до зменшення магнітної сприйнятливості. Дослідження вищенаведених характеристик (таких як первісна крива намагнічування та магнітна сприйнятливість) методом Монте-Карло доволі регулярно було предметом роботи дослідницьких груп по всьому світу, а результати публікуватися в досить престижних журналах, навіть таких як Physical Review Letters, див., наприклад, [109, 127].

Відсутність часової квантифікації кроку Монте-Карло не єдина проблема під час моделювання ансамблю наночастинок, завислих у рідині. Так, для достатньо великих частинок та слабкого відштовхування, утворюються кластери, які, фактично, поводяться як один об'єкт і кожну складову вже не можна розглядати як незалежну. В роботі [128] був запропонований підхід, коли за один крок Монте-Карло зміни вносились у положення саме кластера як цілого. Це дозволило зменшити час моделювання та підвищити його реалістичність. Ця ідея знайшла подальший розвиток та була розширена на випадок полідисперсного ансамблю [129], а, також, була застосована для пояснення структурних особливостей тонких плівок, отриманих методом осадження [130].

### 1.4.4. Метод молекулярної динаміки

Незважаючи на легку реалізацію та низьке споживання обчислювальних ресурсів, метод Монте-Карло є незастосованим у випадку наявності залежних від часу зовнішніх дій. Тому для повного виконання задач даного дисертаційного дослідження доцільно послуговуватися іншим підходом – методом молекулярної динаміки. Даний метод фактично являє собою низку технік комп'ютерного моделювання для аналізу, в першу чергу, фізичних рухів атомів і молекул. Метод дуже широко застосовується в хімічній фізиці, матеріалознавстві та, особливо, біофізиці для розрахунку властивостей органічних сполук. На певному реальному проміжок часу атомам або молекулам дають можливість змінювати стан один одного за допомогою певних модельних потенціалів. У такий спосіб у підсумку одержуються певне уявлення про часову еволюцію системи. Найчастіше фактичним результатом моделювання є траєкторії атомів і молекул. Відповідно, не зважаючи на квантово-механічну природу мікросвіту, метод ґрунтується на інтегруванні рівнянь руху: тобто він заснований на інтегруванні зв'язаних рівнянь Ланжевена для кожного елемента ансамблю [131, 132]. Саме тому потенціали взаємодіє за типом (1.43) та (1.47) у застосуванні до атомів і молекул є модельними. Конструюються такі потенціали штучно за емпіричними даними, наприклад за даними ядерного магнітного резонансу або кристалографічних даних. Можливий хімічний зв'язок між атомами моделюють за допомогою ефективних сил пружності на розтяг, згин або кручення. За відсутності хімічного зв'язку взаємодія моделюється вже описаним раніше потенціалом Ленарда-Джонса (1.47) [133].

Для відтворення реальної поведінки реальних молекул у русі модельні потенціали параметризуються відповідно до зазначених експериментальних методів та, на додачу, квантово-механічних розрахунків. Ця параметризація включає визначення ідеальної жорсткості та довжини пружин, що описують хімічний зв'язок та атомні кути, визначення відповідних елементарних зарядів, що використовуються для обчислення енергій електростатичної взаємодії, визначення належних атомних радіусів ван дер Ваальса тощо. Саме у сукупності ці параметри називаються «силовим полем», оскільки вони описують внесок різних атомних сил, що регулюють процес моделювання. У моделюванні молекулярної динаміки зазвичай використовують декілька силових полів, таких як AMBER [134], CHARMM [135] та GROMOS [136]. Вони принципово відрізняються за способом їх параметризації, але, як правило, дають схожі результати.

У той самий час, даний числовий метод обмежений двома основними факторами. По-перше, використовувані силові поля все ж є модельними та неуніверсальними. Цей недолік в кожній конкретній ситуації може до певної міри виправлятись через залучення квантово-мехнаічних розрахунків та поєднання їх із класичними рівняннями Ланжевена, як це було зроблено у роботі [137]. Тут ділянки протеїну, що містили залізо, яке відповідало за каталіз, моделювалися «з перших принципів», або з рівняння Шрьодінгера. Не такі важливі для предмету досліджень інші ділянки молекули для спрощення обчислень моделювалися в рамках класичних підходів молекулярної динаміки. По-друге, далекодіючий характер взаємодіє потребує великих обчислювальних потужностей. Тому завжди присутні обмеження або за часом моделювання, або за розміром ансамблю. Ці обмеження долаються постійним розвитком обчислювальної потужності та широким застосуванням графічних процесорів для обчислень, про що детальніше буже сказано нижче.

Попри розширення області застосування вже згаданого методу моделювання «з перших принципів», або DFT (density functional theory), метод молекулярної динаміки все ще залишається досить затребуваним інструментом. Так, на момент написання цієї частини рукопису дисертації на сайті провідного журналу Nature в розділі «Latest Research and Reviews» можна було знайти низку посилань на нещодавні дослідження. Зокрема, у роботі [138] даний метод застосовувався для вивчення взаємодіє терапевтичного препарату з протеїнами нейронів головного мозку під час запобігання хворобі Паркінсона. У роботі [139] досліджуються нелінійні механізми одномолекулярних реакцій з точки зору встановлення швидкості подібного класу реакцій. Особливості каталізу в присутності суб-нанометрових кластерів золота були досліджені у роботі [140]. Інформація постійно оновлюється та доступна за посиланням https://www.nature.com/subjects/molecular-dynamics.

Метод молекулярної динаміки легко застосовується до моделювання властивостей ансамблю феромагнітних наночастинок, оскільки відповідні рівняння Ланжевена є відомими та обґрунтованими. Так, дана техніка має більш високі вимоги як до обчислювального обладнання, так і до якості програмного коду, але вона не містить обмежень, що властиві методу Монте-Карло. Саме тому метод молекулярної динаміки широко використовується для опису властивостей ферорідин. Найбільш актуальний та розгорнутий опис застосування такого підходу подано у роботі [141]. Відповідні рівняння руху було подано як

$$\mathcal{M}_i \dot{\mathbf{v}}_i = \mathbf{F}_i - 6\pi \eta R_i \mathbf{v}_i + \mathbf{\Gamma}_i^T, \qquad (1.48a)$$

$$J_i \dot{\boldsymbol{\omega}}_i = \mathbf{m}_i \times \mathbf{H} - 6\eta V_i \boldsymbol{\omega}_i + \boldsymbol{\Gamma}_i^R.$$
(1.48b)

де  $\mathcal{M}_i$  – маса *i*-ої частинки,  $\mathbf{v}_i$  – швидкість *i*-ої частинки,  $\mathbf{F}_i$  – сила, що діє на *i*-ту частинку,  $R_i$  – радіус *i*-ої частинки,  $\mathbf{\Gamma}_i^T$  – випадкова функція, що відповідає за трансляційні флуктуації, де  $\mathbf{\Gamma}_i^R$  – випадкова функція, що відповідає за флуктуації обертового характеру. Дві останні функції апроксимуються білим гаусівським шумом з нульовим середнім та кореляційною функцією, пропорційною до дельта-функції Дірака

$$\langle \Gamma_{i\alpha}^T(t) \rangle = 0, \langle \Gamma_{i\alpha}^R(t) \rangle = 0$$
 (1.49)

$$\langle \Gamma_{i\alpha}^T(t) \cdot \Gamma_{j\beta}^T(t) \rangle = 36\pi \eta R_i k_B T \delta_{ij} \delta_{\alpha\beta} \delta(t - t'), \qquad (1.50a)$$

$$\langle \Gamma^R_{i\alpha}(t) \cdot \Gamma^R_{j\beta}(t) \rangle = 36\eta V_i k_B T \delta_{ij} \delta_{\alpha\beta} \delta(t - t').$$
(1.50b)

Сили  $\mathbf{F}_i$  розраховуються як градієнт потенціалів (1.43) та (1.47). Шляхом чисельного інтегрування рівнянь (1.48) було розраховано осереднену намагніченість

$$\langle \mathbf{m}(t) \rangle = \frac{1}{t_{sim}} \int_{t_0}^{t_0 + t_{sim}} \left( \frac{1}{V_e} \sum_{i=1}^N \mathbf{m}_i(t) \right), \tag{1.51}$$

де *i* – індекс конкретної наночастинки у рідині, *N* – їх кількість, *V<sub>e</sub>* – об'єм середовища. За допомогою (1.51) була визначена початкова магнітна сприйнятливість та побудовано криві початкового намангічування для різних значень концентрації частинок, що задається виразом

$$c = \frac{N}{V_e} \frac{\pi D_0^3}{6},\tag{1.52}$$

та характерної інтенсивності дипольної взаємодії, що визначається виразом

$$\Lambda = \frac{m^2}{4\pi k_B D_0^3}.\tag{1.53}$$

Даний підхід широко використовувався в подальших дослідженнях. Так, структура ферорідни та первинна сприйнятливість вивчалися в роботах [141, 142]; у роботі [143] повідомляється про чисельні результати самоорганізації та фазових переходів в агрегованих структурах; вплив розподілу розмірів, динамічні та структурні ефекти вивчалися в [144, 145]; нарешті, спектри магнітної сприйнятливості та релаксаційні властивості були досліджені чисельно в [146, 147].

У той же час вплив дипольної взаємодії на втрати потужності досліджувався за допомогою моделі, заснованої на рівнянні Ландау-Ліфшица, де враховується лише внутрішня загасаюча прецесія магнітного моменту [148–151]. Цей підхід справедливий при деяких обставинах, але він використовується, в першу чергу, через більш прості рівняння руху. Тому роль дипольної взаємодії в дисипації енергії для наночастинок, завислих у в'язкій рідині, залишається неясною навіть у спрощених модельних розглядах.

### 1.4.5. Розрахунок дипольних полів

Моделювання ферорідин за допомогою методології, описаної вище, в першу чергу передбачає вирішення задачі багатьох тіл (N-body problem), на що однозначно вказує вид потенціалів (1.43), (1.47). Також, до такого класу задач відносяться системи з гравітаційною взаємодією, системи заряджених частинок тощо. Як вже згадувалось, проблемою, яка супроводжує моделювання таких ансамблів, є час розрахунку, який пропорційний до квадрату числа елементів ( $N^2$ ). Цей факт робить практично неможливим моделювання систем з великого числа елементів із застосуванням навіть дуже потужних персональних комп'ютерів. Час розрахунки можна зменшити, застосувавши традиційні розподілені обчислення, наприклад, з використанням кластерів або суперкомп'ютерів. Однак, таке рішення має обмеження економічного характеру, оскільки зазначені системи досить дорогі та витратні в обслуговуванні.

Альтернативою до такого підходу може бути використання графічних процесорів (GPU – Graphic Processing Unit). Графічні процесори є комплексом однакових модулів (т. зв. ядер), виконаних на одному кристалі, кожен з яких призначений для виконання обмеженого набору математичних операцій. Спочатку дані пристрої застосовуються для високошвидкісних розрахунків, необхідних для реалістичного відображення тривимірних об'єктів в режимі реального часу, тому GPU широко застосовуються в відеоадаптерах (або відеокартах) персональних комп'ютерів. Зростання ступеня деталізації зображень тісно пов'язаний з ростом обсягів обчислень, що постійно стимулює зростання продуктивності GPU. У свою чергу, зростання продуктивності забезпечується за рахунок збільшення числа ядер GPU. Тому сучасні відеокарти містять десятки тисяч ядер і забезпечують обчислювальну потужність на порядок вище, ніж у навіть у спеціалізованих центральних процесорів (CPU – Central Processing unit).

З самого початку архітектура GPU була орієнтована на виконання паралельних обчислень, що і послужило причиною використання GPU у завданнях, які вимагають великого обсягу однотипних обчислень – так званих загальних розрахунків. До недавнього часу створення програмних реалізацій, що використовують можливості GPU, вимагало спеціальних навичок і знань. Однак, після виходу технології Compute United Device Architecture (CUDA), продукту відомого виробника відеокарт – компанії NVIDIA, ситуація істотно спростилася [152]. Тепер організувати високопродуктивні паралельні обчислення можна з використанням поширених мов програмування, таких як C/C++ або Fortran.

Усе вищесказане, разом з відносною дешевизною відеокарт, призвело до того, що в даний час виконання розрахунків з раціональними числами на графічних процесорах є напрямком, який дуже швидко розвиваються в області високопродуктивних обчислень. Наразі все більше суперкомп'ютерів та кластерів використовують для обчислення саме GPU [153–157], а графічні процесори разом з технологією CUDA все частіше використовуються у методі молекулярної динаміки [153, 158–160].

З іншої сторони, досягти більшої продуктивності можна застосуванням наближених методів обчислення дипольних полів у кожній конфігурації. Однак, найбільш очевидні ідеї тут не будуть працездатним. Так, просте обмеження радіусу взаємодії нехтує далекодіючим характером дипольної взаємодії, а метод середнього поля не буде враховувати кореляції напрямків магнітних моментів між найближчими частинками. Саме тому найбільш відповідним буде так званий алгоритм Барнса-Хата [161], який застосовувався для моделювання гравітаційної взаємодії у галактиках. Він дозволяє, з однієї сторони, врахувати кореляції напрямків, а, з іншої, враховує всю конфігурацію ансамбля через усереднення намагніченості тих наночастинок, що досить далекі від обраної. Шляхом розбиття усієї області на кубічні ділянки та визначення їх кутового розміру по відношенню до вибраної наночастинки, забезпечується гарна алгоритмізація та працездатність підходу. Більш детально принцип дії алгоритму буде подано у наступних розділах.

Альтернативою алгоритму Барнса-Хата є так званий швидкий мультипольний метод (fast multipole method) [162]. У рамках даної техніки взаємодія розраховується одразу між групами наночастинок. Це дає переваги щодо часу розрахунків, однак нехтує важливими кореляціями напрямків саме найближчих частинок, що може вносити похибку у обчислення енергії зовнішнього поля, яка поглинається ансамблем наночастинок. Саме тому в даній роботі для наближеноо обчислення полів застосовується алгоритм Барнса-Хата.

### 1.5. Висновки до розділу 1

На підставі проведеного вище аналізу можна стверджувати, що в рамках моделі наночастинки з вмороженим моментом було вивчено багато феноменів, пов'язаних із взаємодією ферорідини із зовнішнім змінним полем та тим, як характер відгуку визначається індивідуальним рухом кожної наночастинки у ансамблі. Однак, наявні результати не зважаючи на їх важливість, не утворюють єдиної системи, що не дозволяє повною мірою контролювати взаємодію ферорідини з магнітним полем у реальних застосуваннях. І тому більш детальні дослідження дозволять вдосконалити технічні рекомендації стосовно використання систем ферромагнітних частинок у різноманітних галузях.

Послуговуючись моделлю феромагнітної наночастинки з вмороженим магнітним моментом, як до найбільш розробленою у науковій літературі, у даному дисертаційному дослідженні детально та з єдиних позицій буде розглянута взаємодією ферорідини із зовнішнім змінним полем у детерміністичному та стохастичному наближеннях. Також будуть розглянуті колективні ефекти, що виникають внаслідок дипольної взаємодії їх магнітних моментів. Така методологія дозволить, з однієї сторони, декомпозитувати вплив регулярної складової, термічного збудження і колективної поведінки на відгук ферорідини на періодичне поле. З іншої сторони, це найвірніший спосіб зрозуміти синергію цих факторів з точки зору керування відгуком на зовнішні поля.

Опис детерміністичних ефектів має, в першу чергу, методологічну цінність. По-перше, точні аналітичні результати детерміністичного наближення важли-

ві для калібрування подальших чисельних досліджень у стохастичному та/або багаточастинковому наближеннях. По-друге, детерміністичні траєкторії є відправною точкою аналізу складної поведінки у стохастичному та/або багаточастинковому наближеннях, без чого неможливе глибинне розуміння динаміки та оптимізація параметрів системи для отримання бажаного відгуку на зовнішні впливи.

У стохастичному наближенні буде реконструйовано ефективне рівняння Ланжевена, яке дозволить істотно спростити подальше чисельне розв'язання, як це було зроблено для випадку зафіксованої у твердій матриці наночастинки [163]. Це особливо актуально з огляду на подальше розширення моделі на багаточастинковий випадок, коли простота чисельної інтерпретації буде критично важливою для швидкості розрахунків.

Нарешті, колективні ефекти будуть досліджуватися методом молекулярної динаміки. Тут, з метою створення надійного числового інструменту з високим потенціалом модернізації та адаптації до моделювання інших складних систем на відносно дешевому обладнанні, буде використано ефективні рівняння руху, застосовано технологію CUDA [152] та алгоритм Барнса-Хата [161]. Це дозволить багатократно підвищити швидкість розрахунків, яка зростатиме з ростом продуктивності відеокарт. Отриманий інструмент дасть змогу простежити взаємний вплив взаємодії та теплових флуктуацій, сформулювати вимоги до параметрів системи.

# 2. МОДЕЛЬ НАНОЧАСТИНКИ З ВМОРОЖЕНИМ МАГНІТНИМ МОМЕНТОМ: ОСНОВНІ РІВНЯННЯ

### 2.1. Детерміністичне наближення: базові рівняння

Розглянемо наночастинку радіусом R, однорідною густиною  $\rho$  і намагніченістю M, яка зважена у рідині з в'язкістю  $\eta$ . Ця частинка обертається в рідині під дією магнітного поля  $\mathbf{H} = \mathbf{H}(t)$ , яке у загальному випадку має зовнішню та дипольну складову  $\mathbf{H} = \mathbf{H}^{ext} + \mathbf{H}^{dip}$ . Далі використовуються наступні припущення. По-перше, обмінна взаємодія між атомними магнітними моментами вважається домінуючою. Тому модуль намагніченості  $|\mathbf{M}| = M$  наночастинки можна розглядати як постійний параметр. По-друге, вважається, що радіус частинки досить малий (менше декількох десятків нанометрів), тому неоднорідний розподіл намагніченості є енергетично несприятливим. Отже, має місце однодоменний стан, який і характеризується заданою намагніченістю  $\mathbf{M} = \mathbf{M}(t)$ . I, по-третє, одноосьове магнітне поле анізотропії вважається достатньо сильним, щоб намагніченість частинки була спрямована практично вздовж цього поля. Тому намагніченість М вважається жорстко зафіксованою у кристалічній решітці частинки. Наведені припущення складають основу моделі жорсткого диполя. Найпростішим видом руху є обертальна динаміка, рівняння для якої вперше згадуються в роботах [89,164]. Якщо знехтувати обертанням рідини, що оточує частнику, то динаміка частинок регулюється системою рівнянь:

$$\dot{\mathbf{M}} = \boldsymbol{\omega} \times \mathbf{M},$$
 (2.1a)

$$J\dot{\boldsymbol{\omega}} = V\mathbf{M} \times \mathbf{H} - 6\eta V\boldsymbol{\omega}. \tag{2.1b}$$

Тут,  $\boldsymbol{\omega} = \boldsymbol{\omega}(t)$  – кутова швидкість частинки, крапка зверху означає похідну за часом,  $J = (2/5)\rho V R^2$  – момент інерції частинки,  $V = (4/3)\pi R^3$  – об'єм частинки (ми пов'язуємо гідродинамічний об'єм частинки з власним об'ємом), а × позначає векторний добуток. У безрозмірному вигляді рівняння (2.1) можна

$$\dot{\mathbf{m}} = \mathbf{\omega} \times \mathbf{m},$$
  

$$\dot{\mathbf{\omega}} = \frac{1}{\tau_0^2} \mathbf{m} \times \mathbf{h} - \frac{1}{\tau_r} \mathbf{\omega},$$
(2.2)

де  $\boldsymbol{\omega}$  є кутова швидкість наночастинки,  $\mathbf{m} = \mathbf{M}/M$  – одиничний вектор магнітного моменту наночастинки,  $\mathbf{h} = \mathbf{H}/M$  – безрозмірний модуль поля, що діє на частинку,  $\tau_0 = \sqrt{I/VM^2}$  - характерний час відгуку наночастинки на зовнішнє поле, та  $\tau_r = I/6\eta V$  характерний час, що показує швидкість загасання обертання, якщо зняти зовнішню дію. Треба відзначити, що для достатньо великих часів  $t \gg \tau_r$  спостереження виконується умова  $\boldsymbol{\omega} \perp \mathbf{m}$ , оскільки  $\boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{m} \sim \exp(-t/\tau_r)$ .

У даному дослідженні гідродинамічна взаємодія нехтується. Модель жорсткого диполя широко використовується, незважаючи на те, що вона на думку багатьох дослідників є надмірним спрощенням і не враховує низку ефектів. Проте низка результатів свідчить, що гідродинамічна взаємодія часто є не суттєвою. Так, наприклад порівняння результатів чисельного моделювання з використанням низки моделей різного ступеня складності та деталізації [165] вказують на те, що рух рідини може бути некритичним для структурних властивостей ансамблів феромагнітних частинок. Іншим аргументом на користь використання простої моделі жорсткого диполя є наш намір використовувати доступні, прості і дешеві апаратні засоби для подальшого моделювання.

Далі припускається, що частинка збуджується зовнішніми періодичними магнітними полями наступних типів:

$$\mathbf{H}^{ext} = H_m \big[ \mathbf{e}_x \cos(\Omega t) + \mathbf{e}_y \rho \sin(\Omega t) \big] + \mathbf{e}_z H_{0z}, \qquad (2.3a)$$

$$\mathbf{H}^{ext} = \mathbf{e}_z H_m \cos(\Omega t), \tag{2.3b}$$

де  $\mathbf{e}_x$ ,  $\mathbf{e}_y$ ,  $\mathbf{e}_z$  є одиничними векторами декартових координат,  $H_m$  – амплітуда поля,  $\Omega$  – частота поля,  $H_{0z}$  – статичне поле прикладене вздовж осі z, та  $\varrho$ 



Рис. 2.1. Схематичне зображення використаної моделі для випадку однієї частинки. Зображено сферичний жорсткий диполь, його магнітний момент, сферичні та декартові координатні системи, а також зовнішні поля, що діють на систему. а – діє циркулярно-поляризоване поле (2.3а). б – діє лінійно-поляризоване поле (2.3b).

– множник, який визначає тип поляризації ( $-1 \le \rho \le 1$ ). Основна концепція моделі схематично зображена на Рис. 2.1а для циркулярно-поляризованого поля ( $\rho = 1$ , ля (рівняння (2.3a)) і на Рис. 2.1б для лінійно поляризованого поля ( $\rho = 1$ , рівняння (2.3b)).

# 2.1.1. Умови застосування детерміністичного наближення для моделі з вмороженим магнітним моментом

Використана система рівнянь є справедливою у випадку, коли магнітний момент розглядається як "вморожений"в кристалічну решітку. Дане припущення має місце за виконання таких умов:  $H_a \gg H_m$  та  $\kappa = VM^2/k_BT \gg 1$ , тут  $k_B = 1.3807 \cdot 10^{-16}$  см<sup>2</sup>· г· с<sup>-2</sup>· К<sup>-1</sup> – константа Больцмана, T – термодинамічна температура). У відповідності до першої умови, магнітний момент практично не відхиляється від осі анізотропії під час дії зовнішнього поля. У той самий час, остання умова дозволяє розглядати обертові траєкторії наночастинки як практично регулярні, та разом з першою умовою, виключає істотні відхилення магнітного моменту від осі анізотропії завдяки тепловим активаціям. Дані умови можуть бути справедливими для реальних умов. Так, наприклад, для наночастинок магхеміту [166] з наступними параметрами: середній радіус

R = 20nm, поле анізотропії  $H_a = 910$  E, намагніченість  $M = 4.25 \cdot 10^3$  Гс, та амплітуди зовнішнього поля  $H_m = 0.05H_a$ , відношення магнітної та теплової енергії складає  $\kappa \approx 12$ . Тобто, ймовірність істотних відхилень від детерміністичної траєкторії буде дуже мала, а, значить, результати детерміністичного наближення здатні давати вірні результати.

Окрім вимог до амплітуди існують також вимоги до частоти зовнішнього поля. По-перше, частота обмежена знизу. Навіть коли умова  $\kappa \gg 1$  виконується, слід врахувати фактор часу очікування. Якщо останній істотно більший від характерного часу броунівської релаксації [43]  $\tau_B = 3\eta V/(k_B T)$ , то відхилення від детерміністичної траєкторії станеться з великою долею ймовірності. Саме тому буде існувати певна характерна частота  $\Omega_B = 1/\tau_B = k_B T/(3\eta V)$ , що встановлює порядок частот, за яких вже на одному періоді поля теплові флуктуації таки здатні суттєво спотворити картину. Відповідно, поле, яке прикладається, повинно мати частоту, істотно більшу від  $\Omega_B$ . Далі, адекватність до реальності моделі жорсткого диполя може порушуватися протягом так званого часу релаксації Неєля  $au_N = (\Upsilon/\pi)^{-1/2} \exp(\Upsilon) (2 \alpha \gamma H_a)^{-1}$  (тут  $\alpha \ll 1$  – безрозмірна константа загасання,  $\gamma \approx 1.76 \cdot 10^7$  рад  $\cdot c^{-1} \cdot \Gamma c^{-1}$  – гіромагнітне відношення) [34, 36],  $\Upsilon = VMH_a/(k_BT)$ . Даний факт зумовлює існування ще однієї характерної частоти  $\Omega_N = 1/\tau_N = 2lpha \gamma H_a(\Upsilon/\pi)^{1/2} \exp(-\Upsilon)$ , яка обмежує діапазон частот зовнішнього поля зверху. Таким чином, у кінцевому підсумку маємо  $\Omega \gg \max[\Omega_B, \Omega_N]$ . Для вищезгаданих частинок магхеміту [166], та значень  $\alpha = 0.01$  and T = 310 K,  $\eta = 5 \cdot 10^{-2} \Pi$  (що відповідає людській крові), можна легко підрахувати чисельні значення  $\Omega_B \approx 8.54 \cdot 10^3$  Гц та  $\Omega_N \approx 2.08 \cdot 10^{-96}$ Гц або, у кінцевому підсумку,  $\Omega \gg 8.54 \cdot 10^3$  Гц.

У той самий час, частота зовнішнього поля має бути також обмежена знизу. Коли виконується умова  $H_a \gg H$ , відчутні відхилення магнітного моменту **М** від легкої вісі стають ймовірними на частоті, близькій до резонансної [167]  $\Omega_r = \gamma H_a$ ,  $\Omega_r \approx 2.55 \cdot 10^9$  Гц для наночастинок що розглядаються. Таким чином, частотний інтервал, в якому детерміністичне наближення забезпечує адекватні реальності результати складає  $\Omega = (10^4 - 10^8)$  Гц. Дані величини збігаються з частотними параметрами поля, що застосовується у гіпертермії.

#### 2.1.2. Стохастичне наближення: основні рівняння

У випадку, коли розмір частинок досить малий, лівою частиною рівняння (2.1b), тобто доданком, що містить момент інерції  $J\boldsymbol{\omega}$ , можна знехтувати для частот поля у кіло-, мега- та, навіть гігагерцовому діапазоні, які є найбільш цікавими з практичної точки зору. Використовуючи це вже безінерційне наближення і припускаючи, що в системі ще діє випадковий момент сил  $\boldsymbol{\xi} = \boldsymbol{\xi}(t)$ , який генерується термостатом, можна записати

$$\boldsymbol{\omega} = \frac{1}{6\eta} \mathbf{M} \times \mathbf{H} + \frac{1}{6\eta V} \boldsymbol{\xi}.$$
 (2.4)

Підставимо останній вираз у рівняння (2.1а), та отримаємо рівняння

$$\dot{\mathbf{M}} = -\frac{1}{6\eta} \mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}) - \frac{1}{6\eta V} \mathbf{M} \times \mathbf{\xi}, \qquad (2.5)$$

яке описує стохастичне обертання частинок у в'язкій рідині. Оскільки намагніченість частинки *M* постійна у часі, для подальших розрахунків доцільно переписати рівняння (2.5) у сферичних координатах.

$$\dot{\theta} = \frac{1}{\tau_1} \left( h_x \sin \theta \cos \phi + h_y \sin \theta \sin \phi + h_z \cos \theta \right) \cot \theta - \frac{1}{\tau_1} \frac{h_z}{\sin \theta} + \sqrt{\frac{2}{\tau_2}} \left( \zeta_y \cos \phi - \zeta_x \sin \phi \right), \qquad (2.6a)$$

$$\dot{\phi} = \frac{1}{\tau_1 \sin^2 \theta} (h_y \cos \phi - h_x \sin \phi) - \sqrt{\frac{2}{\tau_2}} [(\zeta_x \cos \phi + \zeta_y \sin \phi) \cot \theta - \zeta_z].$$
(2.6b)

Тут  $\boldsymbol{\zeta} = (12\eta V k_B T)^{-1/2} \boldsymbol{\xi}$  – перемасштабований випадковий момент сили,  $k_B$  – константа Больцмана, T – абсолютна температура,  $\tau_1 = 6\eta/M^2$  та

 $\tau_2 = 6\eta V/(k_B T)$  – характерні часи обертання частинок, індукованого зовнішнім магнітним полем і тепловим випадковим моментом сили, відповідно. Декартові компоненти  $\zeta_{\nu}$  ( $\nu = x, y, z$ ) являють собою незалежні Гаусівські білі шуми з нульовим середнім значенням,  $\langle \zeta_{\nu} \rangle = 0$ , і кореляційними функціями  $\langle \zeta_{\nu}(t)\zeta_{\nu}(t') \rangle = \Delta \delta(t - t')$ , де  $\langle \cdot \rangle$  означає осереднення за всіма реалізаціями Вінеровських процесів  $W_{\nu}(t)$ , які й продукують шуми  $\zeta_{\nu}$ ,  $\Delta$  – безрозмірна інтенсивність шуму, та  $\delta(t)$  – дельта-функція Дірака.

### 2.1.3. Стохастичне наближення: рівняння Фокера-Планка

Важливою особливістю рівнянь Ланжевена у формі (2.6) є те, що шуми  $\zeta_{\nu}$  мультиплікативні, тобто вони множаться на функції полярного та азимутального кутів  $\theta$  і  $\phi$ . Тому властивості руху, отримані за допомогою таких рівнянь, можуть залежати від інтерпретації шумів, що, в свою чергу (див., наприклад, у [168, 169]), може ускладнити подальші дослідження. На противагу, властивості деяких багатовимірних систем можуть не залежати від інтерпретації шумів [170], що відкриває можливості для подальшого спрощення. Для цього розглянемо проблему стохастичного обертання частинки з іншої точки зору, а, саме, зі статистичної [3].

Спершу, перепишемо систему стохастичних рівнянь (2.6) у вигляді

$$\dot{o}_i = f_i(\mathbf{o}, t) + \sum_{j=1}^3 g_{ij}(\mathbf{o})\zeta_j.$$
(2.7)

Тут  $o_i$  (i = 1, 2) є компонентами  $2 \times 1$  матриці [двохкомпонентний вектор  $\mathbf{o} = \mathbf{o}(t)$ ]  $(o_i) = \begin{pmatrix} o_1 \\ o_2 \end{pmatrix}$  з  $o_1 = \theta$  та  $o_2 = \phi$ , а доданок, що відповідає за знос  $f_i(\mathbf{o}, t)$  складає елементи  $2 \times 1$  матриці

$$(f_i) = -\frac{1}{\tau_1} \begin{pmatrix} \partial w / \partial o_1 \\ \sin^{-2} o_1 \partial w / \partial o_2 \end{pmatrix}$$
(2.8)

де  $w = W/VM^2$ ,  $W = -\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}$  – магнітна енергія, або т.з. енергія Зеємана,  $\zeta_1 = \zeta_x(t), \ \zeta_2 = \zeta_y(t), \ \zeta_3 = \zeta_z(t),$  та функції  $g_{ij}(\mathbf{o})$  є елементами 2×3 матриці

$$(g_{ij}) = -\sqrt{\frac{2}{\tau_2}} \begin{pmatrix} \sin o_2 & -\cos o_2 & 0\\ \cot o_1 \cos o_2 & \cot o_1 \sin o_2 & -1 \end{pmatrix}.$$
 (2.9)

Далі, щоб розписати рівняння (2.7), спочатку припускаємо, що прирощення  $\delta o_i = o_i(t + \tau) - o_i(t)$  змінних  $o_i$  за умови, що  $\tau \ll \min\{\tau_1, \tau_2\}$  визначаються як

$$\delta o_i = f_i(\mathbf{o}, t)\tau + \sum_{j=1}^3 g_{ij}[\mathbf{o}(t+\lambda_j\tau)]\delta W_j, \qquad (2.10)$$

де  $\lambda_j \in [0,1]$  – параметри, які характеризують дію білого шуму  $\zeta_j$ , та  $\delta W_j = W_j(t+\tau) - W_j(t)$  – прирощення вінеровських процесів,  $W_j(t)$ , які генеруються шумами  $\zeta_j$ . Оскільки ці шуми вважаються незалежними і статистично еквівалентними, приріст  $\delta W_j$  може повністю характеризуватися двома умовами

$$\langle \delta W_j \rangle = 0, \quad \langle \delta W_j \delta W_l \rangle = \Delta \delta_{jl} \tau$$
 (2.11)

де  $\delta_{jl}$  – дельта-символ Кронекера. Нарешті, якщо прийняти до уваги той факт, що  $o_k(t + \lambda_j \tau) \approx o_k(t) + \lambda_j \delta o_k$  та розписати останній доданок у рівнянні (2.10) з лінійною точністю відносно  $\tau$ , отримаємо

$$\delta o_i = f_i(\mathbf{o}, t)\tau + \sum_{j=1}^3 g_{ij}(\mathbf{o})\delta W_j + \sum_{k=1}^2 \sum_{j,l=1}^3 \lambda_j \frac{\partial g_{ij}(\mathbf{o})}{\partial u_k} g_{kl}(\mathbf{o})\delta W_l \delta W_j.$$
(2.12)

Таким чином, стохастичні рівняння (2.7) стали визначеними для різничної схеми (2.12), в якій дія шумів враховується не лише завдяки прирощенням  $\delta W_j$  вінеровських процесів, згенерованих шумами  $\zeta_j$ , але й також завдяки параметру  $\lambda_j$ , який реалізує додатковий зв'язок системи з білими шумами. Оскільки останній доданок у правій частині рівняння (2.12) має порядок першого ступеня  $\tau$  [порівняно з (2.11)], такий зв'язок може суттєво змінити статистичні властивості величини  $o_i$ . Хоча випадки, в яких  $\lambda_j = 0, 1/2$ , та 1, що відповідає інтерепретаціям рівнянь Ланжевена за Іто [171], Стратоновича [172], та Климонтовича [173] відповідно, що найчастіше використовуються, будь-які інші значення  $\lambda_j$  є дозволеними з математичної точки зору. Таким чином, вибір параметрів  $\lambda_j$  у рівняннях (2.6) може бути здійсненим з фізичних міркувань, як буде показано нижче.

Тепер, використовуючи рівняння (2.11) та (2.12), а, також, дворівневу процедуру осереднення [174], ми визначаємо рівняння Фокера-Планка, що відповідає рівнянню Ланжевена (2.7). Введемо залежну від часу щільність ймовірності для обертових станів наночастинки  $P = P(\mathbf{O}, t)$  де  $\mathbf{o}(t) = \mathbf{O}$  як  $P = \langle \delta (\mathbf{o}(t) - \mathbf{O}) \rangle$ , де  $\mathbf{O}$  є матрицею-вектором з постійними компонентами  $O_1$ and  $O_2$ . Далі, прямими обчисленнями, аналогічними до поданих у роботі [170] отримуємо шукане рівняння Фоккера-Планка у наступному вигляді:

$$\frac{\partial}{\partial t}P + \sum_{i=1}^{2} \frac{\partial}{\partial O_{i}} \Big( f_{i}(\mathbf{O}, t) + \tilde{f}_{i}(\mathbf{O}) \Big) P \\ - \frac{\Delta}{2} \sum_{i,k=1}^{2} \sum_{j=1}^{3} \frac{\partial^{2}}{\partial O_{i} \partial O_{k}} g_{ij}(\mathbf{O}) g_{kj}(\mathbf{O}) P = 0, \qquad (2.13)$$

де

$$\widetilde{f}_{i}(\mathbf{O}) = \Delta \sum_{k=1}^{2} \sum_{j=1}^{3} \lambda_{j} \frac{\partial g_{ij}(\mathbf{O})}{\partial O_{k}} g_{kj}(\mathbf{O})$$
(2.14)

є додатковими, індукованими шумом, зносові доданки, які залежать від інтерпретації шуму (тобто, від параметрів  $\lambda_j$ ) в стохастичних рівняннях (2.7). Варто зазначити тим не менше, що оскільки шум  $\zeta_3$  є адитивним, і тому доданки  $\partial g_{i3}(\mathbf{O})/\partial O_k = 0$ , та, як наслідок, і щільність ймовірності P не залежать від  $\lambda_3$ .

Якщо безрозмірна магнітна енергія w не залежить від часу, то виконуються умови  $f_i(\mathbf{O}, t) = f_i(\mathbf{O})$  та, як наслідок, P прямує до рівноважного значення  $P_0 = P_0(\mathbf{O})$  аз  $t \to \infty$ . У цьому окремому випадку рівняння (2.13) для  $P_0$ набуває вигляду

$$\sum_{i=1}^{2} \frac{\partial}{\partial O_{i}} \Big( f_{i}(\mathbf{O}) + \widetilde{f}_{i}(\mathbf{O}) \Big) P_{0}$$
$$- \frac{\Delta}{2} \sum_{i,k=1}^{2} \sum_{j=1}^{3} \frac{\partial^{2}}{\partial O_{i} \partial O_{k}} g_{ij}(\mathbf{O}) g_{kj}(\mathbf{O}) P_{0} = 0.$$
(2.15)

Природно припустити, що розв'язком цього рівняння є щільність ймовірності Больцмана, яка для h = 0 може бути записана у відомій формі.

$$P_0 = \frac{1}{4\pi} \frac{\kappa h_z}{\sinh(\kappa h_z)} \sin O_1 e^{\kappa h_z \cos O_1}, \qquad (2.16)$$

Легко побачити, що введений раніше параметр  $\kappa$  є нічим іншим, як відношенням характеристичних часів  $\kappa = \tau_2/\tau_1 = M^2 V/(k_B T)$ . Підстановкою рівняння (2.16) у рівняння (2.15) та використовуючи означення (2.8) та (2.9), прямими обчисленнями отримуємо

$$\lambda_{1} + \lambda_{2} - 1 + \frac{\kappa h_{z}}{\Delta} [2 + \Delta(\lambda_{1} + \lambda_{2} - 3)] \cos O_{1}$$

$$- (\lambda_{2} - \lambda_{1}) \cos(2O_{2}) \left(\frac{4}{\sin^{2} O_{1}} + \kappa h_{z} \cos O_{1} - 1\right)$$

$$+ \frac{(\kappa h_{z})^{2}}{\Delta} (\Delta - 1) \sin^{2} O_{1} = 0. \qquad (2.17)$$

Ця умова виконується для всіх можливих значень змінних  $O_1$  and  $O_2$  ( $0 \le O_1 \le \pi, 0 \le O_2 < 2\pi$ ) та параметру  $\kappa h_z$  ( $0 \le \kappa h_z < \infty$ ), тобто, рівняння (2.16)

є ров'язком рівняння Фокера-Планка (2.15), якщо лише

$$\Delta = 1, \quad \lambda_1 = \lambda_2 = \frac{1}{2}. \tag{2.18}$$

Таким чином, рівняння (2.6) з гаусовими білими шумами одиничної інтенсивності інтерпретуються в сенсі Стратоновича, випадкові обертання наночастинок характеризуються статистикою Больцмана для достатньо великих значень часу спостереження.

Далі, з урахуванням умов (2.18) та введенням для зручності нових змінних  $\Theta = O_1$  and  $\Phi = O_2$ , рівняння Фоккера-Планка(2.13)може бути переписане у такому вигляді

$$\frac{\partial P}{\partial t} - \frac{1}{\tau_1} \frac{\partial}{\partial \Theta} \left( \frac{\partial w}{\partial \Theta} - \frac{1}{\kappa} \cot \Theta \right) P - \frac{1}{\tau_1 \sin^2 \Theta} \frac{\partial}{\partial \Phi} \left( \frac{\partial w}{\partial \Phi} P \right) - \frac{1}{\tau_2} \left( \frac{\partial^2}{\partial \Theta^2} + \frac{1}{\sin^2 \Theta} \frac{\partial^2}{\partial \Phi^2} \right) P = 0.$$
(2.19)

або розписавши частинні похідні від енергії у явному вигляді

$$\frac{\partial P}{\partial t} + \frac{1}{\tau_1} \frac{\partial}{\partial \Theta} \Big[ \left( h_x \cos \Phi + h_y \sin \Phi \right) \cos \Theta - h_z \sin \Theta \\
+ \frac{\cot \Theta}{\kappa} \Big] P + \frac{1}{\tau_1 \sin^2 \Theta} \frac{\partial}{\partial \Phi} \big( h_y \cos \Phi - h_x \sin \Phi \big) P \\
- \frac{1}{\tau_2} \frac{\partial^2 P}{\partial \Theta^2} - \frac{1}{\tau_2} \frac{1}{\sin^2 \Theta} \frac{\partial^2 P}{\partial \Phi^2} = 0,$$
(2.20)

Ми припускаємо, що розв'язок  $P = P(\Theta, \Phi, t)$  цього рівняння є нормованим, тобто,

$$\int_{0}^{\pi} d\Theta \int_{0}^{2\pi} d\Phi P(\Theta, \Phi, t) = 1, \qquad (2.21)$$

та задовольняє початковим умовам  $P(\Theta, \Psi, 0) = \delta(\Theta - \Theta_0)\delta(\Phi - \Phi_0)$  with  $\Theta_0 = \theta(0)$  and  $\Phi_0 = \phi(0)$ .

#### 2.1.4. Стохастичне наближення: ефективні рівняння Ланжевена

Згідно з наведеними вище результатами, основні рівняння Ланжевена (2.6) слід інтерпретувати в сенсі Стратоновича. Завдяки цьому, а також тому, що система двох рівнянь (2.6) містить три Гаусівських білих шуми, дослідження динаміки обертання наночастинок за допомогою чисельного розв'язання цих рівнянь не є цілком практичним. Тому зручно замість рівнянь (2.6) використовувати систему ефективних рівнянь Ланжевена, що задовольняють наступним вимогам. По-перше, статистичні властивості розв'язків базових і ефективних рівнянь повинні бути однаковими, а по-друге, ефективні рівняння повинні інтерпретуватися в сенсі Іто та містити два, а не три незалежні гаусові білі шуми. Показано, що відповідну систему ефективних рівнянь Ланжевена можна записати як

$$\dot{\theta} = -\frac{1}{\tau_1} \frac{\partial w}{\partial \theta} + \frac{1}{\tau_2} \cot \theta + \sqrt{\frac{2}{\tau_2}} \mu_1,$$

$$\dot{\phi} = -\frac{1}{\tau_1 \sin^2 \theta} \frac{\partial w}{\partial \phi} + \sqrt{\frac{2}{\tau_2}} \frac{1}{\sin \theta} \mu_2,$$
(2.22)

або після подання похідних від безрозмірної енергії за кутовими координатами в явному вигляді

$$\dot{\theta} = \frac{1}{\tau_1} \left( h_x \cos \phi + h_y \sin \phi \right) \cos \theta - \frac{1}{\tau_1} h_z \sin \theta + \frac{1}{\tau_2} \cot \theta + \sqrt{\frac{2}{\tau_2}} \mu_1,$$
(2.23a)

$$\dot{\phi} = \frac{1}{\tau_1} (h_y \cos \phi - h_x \sin \phi) \frac{1}{\sin \theta} + \sqrt{\frac{2}{\tau_2} \frac{1}{\sin \theta}} \mu_2, \qquad (2.23b)$$

де  $\mu_i = \mu_i(t)$  (i = 1, 2) незалежні Гаусівські білі шуми з нульовим середнім  $\langle \mu_i(t) \rangle = 0$ , та кореляційною функцією, пропорційною до дельта-функції,  $\langle \mu_i(t) \mu_i(t') \rangle = \delta(t - t')$ . Зазначимо, що аналогічна система ефективних рівнянь Ланжевена, що відповідає рівнянню Ландау-Ліфшица-Гілберта, описує стохастичну динаміку намагніченості в однодоменних феромагнітних наночастинках, вбудованих у тверду матрицю, була запропонована в роботі [163], та для опису обертальної динаміки феромагнітних часток у рідинах в роботі [175].

У відповідності до результатів роботи [175], щільність ймовірностей розв'язків рівнянь (2.23) задовольняє рівнянню Фокера-Планка (2.19). Як наслідок, обертальні властивості феромагнітних наночастинок можуть бути описані або відповідно до співвідношень (2.6), інтерпретованими в сенсі Стратоновича, або, що еквівалентно, рівняннями (2.23), інтерпретованими в сенсі Іто. Чудова особливість останнього рівняння полягає в тому, що, незалежно від їх інтерпретації, відповідне рівняння Фоккера-Планка задано рівнянням (2.19). В останньому можна переконатися, якщо переписати рівняння (2.23) у формі

$$\dot{o}_i = F_i(\mathbf{o}, t) + \sum_{j=1}^2 G_{ij}(\mathbf{o})\mu_j,$$
(2.24)

де

$$(F_i) = -\frac{1}{\tau_1} \begin{pmatrix} \frac{\partial w}{\partial o_1} - (1/\kappa) \cot o_1 \\ \sin^{-2} o_1 \frac{\partial w}{\partial o_2} \end{pmatrix}$$
(2.25)

та

$$(G_{ij}) = \sqrt{\frac{2}{\tau_2}} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1/\sin o_1 \end{pmatrix}, \qquad (2.26)$$

та з урахуванням того, що

$$\sum_{k=1}^{2} \frac{\partial G_{ij}(\mathbf{o})}{\partial o_k} G_{kj}(\mathbf{o}) = 0$$
(2.27)

що має місце для усіх i та j. Це означає, що [170] [див. також рівняння (2.13) та (2.14)] рівняння Фокера-Планка, яке відповідає рівнянню (2.23), тобто, рів-

няння (2.19), не залежить від парамтерів  $\lambda_j$  які забезпечують кількісний сенс інтерпретації стохастичних рівнянь (2.23). Хоча цей висновок очевидний для  $\lambda_1$  (тому що шум  $\mu_1$  є адитивним), незалежність рівняння (2.19) від  $\lambda_2$  є доволі неочікуваною (оскільки шум  $\mu_2$  є мультиплікативним). Зазначимо в цьому контексті, що, на відміну від одномірного випадку, завжди існує клас багатовимірних рівнянь Ланжевена з мультиплікативними Гауссівськими білими шумами, інтерпретація яких не впливає на відповідні рівняння Фоккера-Планка. Отримані вище результати показують, що рівняння (2.23) належать до цього унікального класу рівнянь Ланжевена.

У статистичному сенсі останні рівняння еквівалентні початковим рівнянням руху (2.6). У той же час, рівняння (2.23), на відміну від рівнянь (2.6), не містять тих доданків, що складаються з функцій кутових аргументів, помножених на шуми, які відповідають за теплові збурення тих же самих (що принципово) кутових координат. Іншими словами, хоч рівняння (2.23b) формально містить мультиплікативний шум, але тут шум, що відповідає за теплові коливання азимутального кута  $\phi$  множиться на функцію від полярного кута  $\theta$ . Останній факт дозволяє в подальшому не зважати на наявність такого формально мультиплікативного шуму під час подальшої чисельної обробки. Оскільки  $\mu_i$  представлені Гауссовськими білими шумами, які інтерпретуються в сенсі Стратоновича, використання рівняння (2.23) замість (2.6) в чисельному моделюванні зручніше завдяки більш простим і швидшим алгоритмам. Це особливо важливо з точки зору моделювання великих ансамблів наночастинок, оскільки тут є критичним час виконання однієї ітерації для однієї частинки. Шляхом введення безрозмірного часу  $\tilde{t} = t/\tau_1$ , можна записати систему *приведених* ефективних рівнянь Ланжевена (2.23) як зазначено нижче

$$\frac{d\theta}{d\tilde{t}} = \left(h_x \cos\phi + h_y \sin\phi\right) \cos\theta - h_z \sin\theta + \frac{1}{\kappa} \cot\theta + \sqrt{\frac{2}{\kappa}} \tilde{\mu}_1, \qquad (2.28a)$$

$$\frac{d\phi}{d\tilde{t}} = \frac{1}{\sin\theta} \left( h_y \cos\phi - h_x \sin\phi \right) 
- \sqrt{\frac{2}{\kappa}} \frac{1}{\sin\theta} \tilde{\mu}_2,$$
(2.28b)

де  $\tilde{\mu}_i = \tilde{\mu}_i(\tilde{t}) = \sqrt{\tau_1} \, \mu_i(\tilde{t}\tau_1) \, (i = 1, 2)$  безрозмірні Гауссові білі шуми  $\langle \tilde{\mu}_i(\tilde{t}) \rangle = 0$  і  $\langle \tilde{\mu}_i(\tilde{t}) \tilde{\mu}_i(\tilde{t}') \rangle = \delta(\tilde{t} - \tilde{t}')$ . Саме така система рівнянь є найбільш зручною для аналітичних та чисельних розрахунків, особливо для моделювання великих ансамблів.

#### 2.1.5. Втрати потужності: визначення та методика розрахунку

Динаміка частинки у в'язкій рідині супроводжується дисипацією енергії. Втрати потужності Q, тобто розсіювання магнітної енергії за одиницю часу, вводится стандартно використовуючи варіацію магнітної енергії  $\delta W$ , яка пов'язана з елементарним прирощення магнітного моменту  $\delta \mathbf{M}$  у зовнішньому полі  $\mathbf{H}^{ext}$ . У припущенні, що всі зміни енергії перетворюються на незворотні втрати, можна написати  $\delta Q = \mathbf{H}^{ext} \delta \mathbf{M}$ . Якщо знехтувати шумом, то в одночастинковому випадку результуюча величина Q отримується шляхом усереднення за часом

$$Q = \lim_{\tau \to \infty} \frac{1}{\tau} \int_0^\tau \mathbf{H}^{ext} \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} dt.$$
 (2.29)

Далі буде зручно послуговуватись потужністю втрат у приведеній формі  $q = Q/(M^2 \tau_1^{-1})$ , яка з врахуванням (2.29) може бути записана у формі

$$q = \lim_{\widetilde{\tau} \to \infty} \frac{1}{\widetilde{\tau}} \int_0^{\widetilde{\tau}} \mathbf{h}^{ext} \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial \widetilde{t}} d\widetilde{t}, \qquad (2.30)$$

Тут доречно підкреслити, що в найпростіших випадках періодичного вимушеного руху **M** інтегрування в рівнянні (2.30) може бути проведено тільки за періодом поля ( $\tilde{\mathcal{T}} = \mathcal{T}/\tau_1$ ),

$$q = \frac{1}{\widetilde{\mathcal{T}}} \int_0^{\widetilde{\mathcal{T}}} \mathbf{h}^{ext} \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial \widetilde{t}} d\widetilde{t}.$$
 (2.31)

У стохастичному випадку для отримання результату нам потрібно додатково виконати усереднення по всіх кутових станах з урахуванням ймовірності кожного з них. У цьому випадку безрозмірна потужність втрат розраховується наступним чином

$$q = \lim_{\widetilde{\tau} \to \infty} \int_{\pi}^{0} d\theta \int_{2\pi}^{0} d\phi P(\theta, \phi, \widetilde{t}) \int_{0}^{\widetilde{\tau}} \mathbf{h}^{ext} \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial \widetilde{t}} d\widetilde{t}.$$
 (2.32)

Оскільки **u** – стохастична функція, інтегрування у формулі (2.32) не може бути здійснено у спосіб, прийнятий для регулярних функцій. Основна складність тут полягає в інтерпретації похідної від часу **u**. Щоб уникнути цього, використаємо добре відомий підхід інтегрування частинами  $\int_{a}^{b} \mathcal{U}(x)\mathcal{V}'(x)dx =$  $[\mathcal{U}(x)\mathcal{V}(x)]_{a}^{b} - \int_{a}^{b} \mathcal{U}'(x)\mathcal{V}(x)dx$ . Тоді ми нехтуємо можливими нелінійними ефектами, такими як хаотичні [176] або квазіперіодичні [177] режими, які мають місце, наприклад, у внутрішній магнітній динаміці у нерухомій частинці. З чисельного розв'язку рівнянь руху (2.6) для детерміністичного наближення і рівняння руху (2.23) для ненульової температури можна зробити наступні висновки. По-перше, вищезазначені режими можуть генеруватися у вузькому частотному діапазоні, коли  $\Omega \sim 1/\tau_1$ . По-друге, у нашому випадку ефекти, викликані цими режимами, пригнічуються тепловими шумами у великому масштабі часу. Тому ми припускаємо  $[\mathbf{uh}]_{\tilde{\tau}}^{0} = 0$ , і для подальших розрахунків ми використовуємо відношення

$$q = -\lim_{\widetilde{\tau} \to \infty} \int_{\pi}^{0} d\theta \int_{2\pi}^{0} d\phi P(\theta, \phi, \widetilde{t}) \int_{0}^{\widetilde{\tau}} \mathbf{u} \frac{\partial \mathbf{h}^{ext}}{\partial \widetilde{t}} d\widetilde{t}.$$
 (2.33)
Якщо щільність ймовірності  $P(\theta, \phi, \tilde{t})$  це відома функція періоду  $\tilde{\mathcal{T}}$ , інтегрування в рівнянні (2.33) здійснюється саме на цьому періоді

$$q = -\frac{1}{\widetilde{\mathcal{T}}} \int_{\pi}^{0} d\theta \int_{2\pi}^{0} d\phi P(\theta, \phi, \widetilde{t}) \int_{0}^{\widetilde{\mathcal{T}}} \mathbf{u} \frac{\partial \mathbf{h}^{ext}}{\partial \widetilde{t}} d\widetilde{t}.$$
 (2.34)

Для чисельного моделювання інтегрування в рівнянні (2.33) замінюється суммою, і використовується відповідна різницева схема. На основі сферичного подання одиничного магнітного моменту  $\mathbf{u} = \mathbf{e}_x \sin \theta \cos \phi + \mathbf{e}_y \sin \theta \sin \phi + \mathbf{e}_z \cos \theta$  і рівняння (2.33), явний вигляд цієї різницевої схеми можна записати як

$$q = -\frac{1}{N_1 N_2} \sum_{i=1}^{N_1 N_2} \left[ \sin \theta(\tilde{t}_i) \cos \phi(\tilde{t}_i) \frac{\partial h_x^{ext}(\tilde{t}_i)}{\partial \tilde{t}} + \sin \theta(\tilde{t}_i) \sin \phi(\tilde{t}_i) \frac{\partial h_y^{ext}(\tilde{t}_i)}{\partial \tilde{t}} + \cos \theta(\tilde{t}_i) \frac{\partial h_z^{ext}(\tilde{t}_i)}{\partial \tilde{t}} \right] \Delta \tilde{t}, \qquad (2.35)$$

де  $N_1 = \tilde{\mathcal{T}}/\Delta \tilde{t}$  – кількість кроків за період зовнішнього поля,  $N_2 = \tilde{\mathcal{T}}_{sim}/\tilde{\mathcal{T}}$  – кількість періодів, протягом яких здійснюється моделювання,  $\Delta \tilde{t}$  – величина елементарного часового приросту, який є постійним у моделюванні.

Нарешті, у випадку взаємодіючого ансамблю, що складається з N частинок і моделюється за допомогою рівнянь (2.37), нам потрібно провести додаткове усереднення за усіма частинками в ансамблі. Тому тут запропонована методологія обчислення потужності втрат знову ускладнюється шляхом реалізації додаткової процедури осереднення у виразі (2.35). У результаті фінальна формула для розрахунку втрат потужності у ансамблі частинок, які взаємодіють, має такий вигляд:

$$q = -\frac{1}{N_1 N_2 N} \sum_{k=1}^{N} \sum_{i=1}^{N_1 N_2} \left[ \sin \theta_k(\tilde{t}_i) \cos \phi_k(\tilde{t}_i) \frac{\partial h_{kx}^{ext}(\tilde{t}_i)}{\partial \tilde{t}} + \sin \theta_k(\tilde{t}_i) \sin \phi_k(\tilde{t}_i) \frac{\partial h_{ky}^{ext}(\tilde{t}_i)}{\partial \tilde{t}} + \cos \theta(\tilde{t}_i) \frac{\partial h_{kz}^{ext}(\tilde{t}_i)}{\partial \tilde{t}} \right] \Delta \tilde{t}.$$
(2.36)

Ми припускаємо, що зменшення енергії зовнішнього поля одночасно компенсується від джерела зовнішнього поля. Крім того, ми не враховуємо збільшення енергії, що виникає внаслідок зміни дипольного поля  $\mathbf{h}_{k}^{dip}$ . Зростання енергії вибраної частинки зі зміною дипольного поля супроводжується таким самим зменшенням енергії інших частинок, які є джерелами цього дипольного поля. Іншими словами, дипольне поле може передавати енергію від однієї частинки до іншої, але не може призвести до наявності додаткових втрат потужності.

Забігаючи наперед, зазначу деталі апаратної та програмної бази розрахунку потужності втрат. Для моделювання одночастинкової стохастичної динаміки, системи рівнянь (2.28) розв'язуються методом Рунге-Кутта другого порядку з часовим кроком  $\Delta \tilde{t} = 0.005 \tilde{T}$  в діапазоні  $N_2 = 1000$  безрозмірних періодів поля для кожної точки графіку залежності. Для моделювання поведінки ансамблю частинок, що взаємодіють, система рівнянь (2.37) розв'язуються аналогічним чином з часовим кроком  $\Delta \tilde{t} = 0.005 \tilde{T}$  в діапазоні  $N_2 = 1000$  безрозмірних періодів поля для кожної точки графіку для N = 4096 кількості частинок. Значення інших параметрів системи зазначені для кожного конкретного випадку нижче. Для моделювання були використані такі апаратні засоби: відеокарти Nvidia GeForce 450 GTS і Nvidia GeForce 650 GTS Ti. Перша була придбана та встановлена в лабораторії "Нерівноважних процесів в матеріалах електронної техніки"за кошти співробітників лабораторії. Друга була придбана за кошти накладних витрат за проектом 0112U001383 (в якому я був безпосереднім виконавцем) та встановлена в PC, що придбаний мною разом із моїм керівником та віддана зазначеній лабораторії в рамках спонсорської допомоги. Код програми був реалізований за допомогою мови C++ та середовища розробки Eclipse, що є безкоштовним.

### 2.1.6. Моделювання ансамблю взаємодіючих частинок

Взаємодія є дуже важливим фактором, що визначає динаміку і властивості феррорідини. Проблема потребує розгляду з двох точок зору. З однієї сторони, отримані дипольні поля, що діють на кожну частинку, можуть істотно впливати на динаміку обертання та, зокрема, на енергію, яка поглинається від зовнішнього поля. З іншої сторони, дипольна взаємодія через свій характер зумовлює кластерну структуру ансамблю, і у самоузгоджений спосіб впливає на розподіл дипольних полів. Точний аналітичний опис ансамблю частинок у в'язкій рідині, що збуджуються змінними у часі полями у в'язкій рідині, швидше за все, неможливий. Тому тут затребуваним є чисельне моделювання. І ключову роль тут відіграє оптимальна форма основних рівнянь, що описують динаміку однієї частинки. Ефективні рівняння (2.28) цілком підходять для цих цілей.

Саме тут ми розширюємо модель, розроблену для одночастинкового наближення до випадку ансамблю. Ми припускаємо, що ансамбль складається з однакових сферичних однорідних феромагнітних одновісних частинок з параметрами, викладеними вище. Обертовий рух таких частинок описується ефективними стохастичними рівняннями, подібними до рівнянь (2.28), які доповнюються стандартними рівняннями поступального руху [1, 141] записані для безінерційного випадку як

$$\frac{d\theta_k}{d\tilde{t}} = \left(h_{kx}\cos\phi_k + h_{ky}\sin\phi_k\right)\cos\theta_k - h_{kz}\sin\theta_k + \frac{1}{\kappa}\cot\theta_k + \sqrt{\frac{2}{\kappa}}\tilde{\mu}_{k1}, \qquad (2.37a)$$

$$\frac{d\phi_k}{d\tilde{t}} = \frac{1}{\sin\theta_k} \left( h_{ky} \cos\phi_k - h_{kx} \sin\phi_k \right) 
- \sqrt{\frac{2}{\kappa}} \frac{1}{\sin\theta_k} \tilde{\mu}_{k2},$$
(2.37b)

$$\frac{d\boldsymbol{\rho}_k}{d\tilde{t}} = \frac{16\pi}{9} (\mathbf{f}_k^{dip} + \mathbf{f}_k^{sr}) + \sqrt{\frac{8}{3\kappa}} \tilde{\mu}_{k3}, \qquad (2.37c)$$

де  $\rho_k$  – це вектор, що визначає безрозмірні (коли за одиницю вимірювання відстані береться радіус частинки R) координати заданої частинки, k – номер індексу заданої частинки в ансамблі,  $\mathbf{h}_k = \mathbf{h}_k^{dip} + \mathbf{h}^{ext}$  – безрозмірне поле, що діє на k-у частинку, яке складається з зовнішньої однорідної частини ( $\mathbf{h}^{ext} = \mathbf{H}^{ext}/M$ ) і сумарного безрозмірного локального дипольного поля, що залежить від положення частинок

$$\mathbf{h}_{k}^{dip} = \sum_{j=1, j \neq k}^{N} \frac{4\pi}{3} \frac{3\boldsymbol{\rho}_{kj}(\mathbf{u}_{j}\boldsymbol{\rho}_{kj}) - \mathbf{u}_{j}\boldsymbol{\rho}_{kj}^{2}}{\rho_{kj}^{5}},$$
(2.38)

де  $\rho_{kj}$  – вектор, що з'єднує дві частинки, виміряний в одиницях R,  $\mathbf{u}_j = \mathbf{M}_j / M$ – масштабований магнітний момент j-ї частинки; N – загальна кількість частинок.

На кожну частинку діють дві сили, які слід враховувати. По-перше,  $\mathbf{f}_k^{dip}$  це сила, що діє на k-у частинку внаслідок її дипольної взаємодії з усіма іншими частинками у ансамблі. По-друге,  $\mathbf{f}_k^{sr}$  це сила, що зумовлена наявність спеціального покриття наночастинок, яке широко використовується в реальних феррорідинах для запобігання агрегації частинок. Для подання у явному вигляді  $\mathbf{f}_k^{dip}$ , ми застосували стандартне визначення  $\mathbf{f}_k^{dip} = (\mathbf{u}_k \bigtriangledown_k) \mathbf{h}_k^{dip}$ . Покриття забезпечує, в першу чергу, відштовхування частинок. У літературі є багато прикладів, коли сила, зумовлена таким покриттям, моделюється за допомогою потенціалу Леннарда-Джонса. Цей тип потенціалу є найбільш прийнятним для подальшого моделювання, оскільки вона характеризується рівноважним станом, що запобігає нескінченному розбігу частинок, навіть якщо дипольна взаємодія слабка.  $\mathbf{f}_k^{sr} = -\nabla_k W_k$ , де  $W_k = 4\varepsilon \sum_{j=1, j \neq k}^N \left[ (\sigma/\rho_{kj})^{12} - (\sigma/\rho_{kj})^6 \right]$ . Тут,  $\sigma$  – параметр, що визначає рівноважну відстань між двома частинками, і  $\varepsilon$  – параметр, що визначає глибину потенціального бар'єру, який треба подолати, щоб розвести дві частинки на нескінченну відстань. Нарешті, ми переписуємо вищезазначені сили, що діють на частинку як

$$\mathbf{f}_{k}^{dip} = \sum_{j=1, j \neq k}^{N} \left[ 3 \frac{\boldsymbol{\rho}_{kj}(\mathbf{u}_{j}\mathbf{u}_{k}) + \mathbf{u}_{k}(\mathbf{u}_{j}\boldsymbol{\rho}_{kj}) + \mathbf{u}_{j}(\mathbf{u}_{k}\boldsymbol{\rho}_{kj})}{\rho_{kj}^{5}} - 15 \frac{\boldsymbol{\rho}_{kj}(\mathbf{u}_{k}\boldsymbol{\rho}_{kj})(\mathbf{u}_{j}\boldsymbol{\rho}_{kj})}{\rho_{kj}^{7}} \right], \qquad (2.39a)$$

$$\mathbf{f}_{k}^{sr} = 24\varepsilon \sum_{j=1, j\neq k}^{N} \frac{\boldsymbol{\rho}_{kj}}{\boldsymbol{\rho}_{kj}^{2}} \left[ \left( \frac{\sigma}{\rho_{kj}} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{\rho_{kj}} \right)^{6} \right].$$
(2.39b)

Розрахунок дипольного поля – це найбільш витратна для обчислення частина чисельного алгоритму. Це основний фактор, що визначає оптимальний баланс між часом обчислення ( $\mathcal{T}_{sim}$ ), розміром ансамблю (N), та обладнанням, що використовується. Точний прямий розрахунок дипольних полів, індукованих усіма частинками, характеризується квадратичною залежністю між часом моделювання та розміром ансамблю ( $\mathcal{T}_{sim} \sim N^2$ ). Замість громіздкого точного розрахунку використовуються два наближення. Першим наближенням є так званий швидкий мультипольний метод [162], що забезпечує продуктивність на рівні співвідношення  $\mathcal{T}_{sim} \sim N$ , а другий – алгоритм Барнса-Хата [161], що забезпечує продуктивність на рівні співвідношення  $\mathcal{T}_{sim} \sim N \log N$ . Незважаючи на кращі показники швидкості, швидкий мультипольний метод не обчислює кореляції станів найближчих сусідніх частинок (що, насправді, зумовлюють основний вплив в ансамблі) з високою точністю. Тому, в нашому розрахунку використовується підхід Барнса-Хата, якому буде присвячений наступний підрозділ. Головна його ідея полягає в усередненні полів, що збуджуються частинками, які досить віддалені від заданої, тоді коли поля, що збуджуються найближчими частинками, розраховуються, навпаки, точно. Це досзволяє враховувати дії усих елементів ансамбля та не нехтувати кореляціями напрямків найближчих сусідів, що є визначальними.

Іншою важливою особливістю нашого чисельного підходу є використання обчислювальних можливостей графічних процесорів відеокарт. Це дає можливість у багато разів збільшити продуктивність обчислень на звичайному комп'ютері. Графічні процесори відеокарти призначені для відображення відео в реальному часі можуть бути адаптовані для обчислень загального призначення. Так звана технологія CUDA, яку розробила компанія Nvidia [152], надає нам зручні інструменти для цього. Сьогодні багато наукових проблем можна вирішити недорого та без використання спеціалізованих апаратних можливостей, таких як кластери чи суперкомп'ютери. Колективна динаміка ансамблів частинок з дипольною взаємодією на великих відстанях є підходящою проблемою для демонстрації здатності CUDA. Деталям використаної методики моделювання присвячена одна з робіт, яка виноситься на захист [1].

### 2.2. Технології числового моделювання

#### 2.2.1. All-Pair алгоритм

Найпростіший та поширений підхід до опису взаємодії у системі з N частинок є підрахунок взаємодії між усіма парами. Саме наявність подвійного перебору і призводить до залежності часу розрахунку за квадратичним законом від розміру ансамблю  $N^2$ . Такий алгоритм ще називають All-Pairs-алгоритм (AP-алгоритм). Він досить повільний, особливо, коли виконується на CPU, тому, як правило, застосовується для системи не більше ніж з  $N = 10^2 - 10^3$  частинок. Виконання даного алгоритму в паралельному режимі з використанням GPU дає суттєвий приріст, при цьому слід зазначити, що ідеологія AP-алгоритму добре

адаптована до архітектури CUDA. Кожен крок інтегрування у стандартному AP-алгоритмі виконується у два етапи. Їх логіка така.

- 1 Розрахунок зміни позицій частинок і напрямків магнітних моментів.
- 2 Оновлення позицій частинок і напрямків магнітних моментів.

Ця структура залишається незмінною в GPU-версії алгоритму з тією лише різницею, що обчислювальні завдання розподіляються між ядрами GPU. Ядра відповідальні за перший етап: обчислюють сили і моменти сил, що діють на частинки, а також відповідні прирости координат частинок і магнітних моментів, відповідно до виразів (2.37) із врахуванням (2.39). Інкременти потім записуються у глобальну пам'ять. Другий етап полягає в оновленні станів частинок за отриманими інкрементами. Тут існує проблема глобальної синхронізації так званих ниток (обчислювальних послідовностей) оскільки вони належать до різних блоків після кожного етапу, починаючи з етапу виконання на окремих ядрах, за умови, що інформація про стан системи зберігається в загальній пам'яті.

Кожна нитка відповідає за одну наночастинку, і таким чином, вона повинна підрахувати сили і моменти сил, що діють на частинку зі сторони решти ансамблю. Щоб прискорити обчислювальний процес, вектор даних з нитки частинки зберігається у загальній пам'яті, де також зберігається інформація про інші частинки, яка необхідна для обчислення відповідних сил взаємодії. Таким чином, маємо два набори масивів даних у глобальній пам'яті, а саме:

- 1 Дані частинок, що призначені ниткам блока.
- 2 Дані частинок для обчислення їх взаємодії.

Необхідні дані являють собою координати частинок і проекції їх векторів магнітних моментів на осі x, y і z. Розміри масивів дорівнюють числу ниток на кожен блок. Перший набір даних є сталим протягом одного кроку інтегрування, але другий набір при цьому змінюється. Так, на початку завантажується інформація про координати і моменти частинок в другий набір масивів у загальній пам'яті. Після обчислення сил і моментів сил діючих на блок частинок, процедура повторюється, таким чином, інформацію про інший набір часток записується в другій набір масивів і так обчислюються відповідні взаємодії.

Перевага описаного підходу полягає у тому, що він використовує глобальну пам'ять найбільш оптимальним способом. Доступ до пам'ять є уніфікований та зрозумілий і немає конфлікту банку спільної пам'яті. Для ансамблю  $N = 10^4$  частинок це призводить до завантаженості GPU на 97.7 відсотків.

### 2.2.2. Застосування алгоритму Барнса-Хата

All-Pairs алгоритм простий та зрозумілий для реалізації на GPU. Його легко імплементувати за допомогою технології CUDA. Але, як уже зазначалося, цей алгоритм гарно масштабується: відповідний час обчислень зростає як  $N^2$ , і його виконання вимагає невиправдано багато часу вже для ансамблю з  $10^5$ частинок.

Істотного прискорення рахунку можна домогтися за рахунок використання наближених алгоритмів розрахунку попарної взаємодії частинок. Через зворотну пропорційність величини дипольного поля до третього ступеня відстані, див.(2.38)), істотні кореляції напрямків магнітних моментів спостерігатимуться лише для наночастинок, розташованих досить близько одна до одної. У той же час, якщо деяка локалізована група частинок досить віддалена від обраної, то немає необхідності в детальному розрахунку попарної взаємодії обраної частинки з кожною іншою з групи. Тоді можна дію групи частинок замінити на дію такої *псевдочастинки*, розміщеної в геометричному центрі групи, магнітний момент якої дорівнює середньому, одержаному в рамках зазначеної групи.

Така ідея разом з інтуїтивно зрозумілим рекурсивним алгоритмом вперше була запропонована для моделювання еволюції космічних об'єктів, таких як зірки та галактики, де взаємодія має гравітаційний характер [161], та одержала назву за іменем авторів: алгоритм Барнса-Хата (Barnes-Hut algorithm, BH).



Рис. 2.2. Ієрархічна декомпозиція Барнса-Хата в двовимірному просторі і відповідне октодерево

Тут розбиття ансамблю на групи відбувається шляхом поділу простору на кубічні комірки з наступним поділом кожної з них на вісім однакових кубічних під-комірок доти, доки кожна комірка, незалежно від розміру, буде містити не більше однієї частинки. Під час розрахунку взаємодії вибраної частинки з іншими, перевіряється кутовий розмір кубічних комірок якщо розглядати з місця розташування обраної частинки, від найбільших до найменших. Якщо кутовий розмір деякої комірки досить малий, то вважається взаємодія відбувається між обраною частинкою і псевдочастинкою, що відповідає за групу. В іншому випадку, послідовно аналізуються всі вісім під-комірок, які утворюють вибрану комірку. Час розрахунку при цьому зростає вже не як  $N^2$ , а як  $N \cdot \log N$ , що дає суттєву перевагу для ансамблів з тисяч і десятків тисяч частинок. Спрощена двовимірна реалізація цього алгоритму у загальних рисах подана на Рис. 2.2.

Сили, що діють на k-ту частинку можуть бути розраховані шляхом «обходу октодерева». Якщо відстань від вибраної частинка до псевдочастинки, що відповідає певній під-комірці, є досить великою, розраховується парна взаємодія цієї псевдочастинки на k-ту частинку. В іншому випадку, перевіряються псевдочастинки з наступних суб-комірок, і так далі (іноді ця процедура може привести в кінці до гілки тільки з однією частинкою в суб-комірці ліворуч). Ці обчислені сили і складають сумарну силу, що діє на k-ту частинку.

Щоб побудувати октодерева на CPU, використовують, як правило, множину – так званих «куп» об'єктів. Ці об'єкти містять: покажчик-нащадок і поля даних, а також їх нащадків, що розподілені динамічно. Щоб уникнути складного і ресурсовитратного динамічного розподілу і доступу до об'єктів «купи», повинна бути використана структура даних на основі масиву. Оскільки у нас є кілька масивів, відповідальних за змінні, з'являється можливість об'єднання звернень до глобальної пам'яті. Частинки і суб-комірки можуть мати однакові поля даних, наприклад, позиції. У цьому випадку використовуються масиви.

На відміну від All-Pairs алгоритму, де використовуються тільки два ядра, оригінальний алгоритм GPU BH має шість ядер [178]:

- 1 Ядро визначення області або комірки.
- 2 Ядро побудови октодерева.
- 3 Обчислення геометричного центру і повного магнітного моменту кожної суб-комірки.
- 4 Сортування частинок за позицією.
- 5 Обчислення сили і поля, що діють на кожну частинку.
- 6 Ядро інтегрування.

Ядро 1 визначає межі основної комірки. Хоча ансамбль обмежується контейнером і частинки не можуть вийти назовні, це ядро все одно використовується для спрощення алгоритмізації. Розмір основних комірок може бути значно меншим характерного розміру контейнера. Крім того, час обчислень цього ядра дуже малий, зазвичай набагато менше 1 відсотка від загального часу одного кроку інтегрування. Ідея цього ядра у тому, щоб знайти мінімальне і максимальне значення позиції частинки. Тут ми використовуємо елементарні операції і вбудовані min i max функції.

Ядро 2 виконує ієрархічне розкладання основної комірки і будує октодерево в тривимірному випадку. Як і в наступний ядрах, частинкам циклічно присвоюються нитки. Коли частинці присвоєно нитка, вона намагається заблокувати відповідний покажчик-нащадок. У разі успіху, нитка переписує покажчикнащадок і знімає блокування. Для виконання легкого блокування, що використовується, щоб уникнути доступу до однієї і тієї ж частини масиву дерева декількома нитками, повинні використовуватися елементарні операції. Щоб синхронізувати процес побудови дерева, використовується syncthreads бар'єр.

Ядро 3 обчислює магнітні моменти і позиції псевдо-частинок, пов'язаних з комірками шляхом обходу несиметричного октодерева від низу до верху. Нитка перевіряє, чи обчислений магнітний момент і геометричні центри всіх субкомірок. Якщо ні, то нитка оновлює внесок розрахованих комірок і чекає результатів від іншої частини суб-комірок. В іншому випадку обчислюється внесок всіх наявних суб-комірок.

Ядро 4 сортує частинки відповідно до їх позиції. Цей крок може прискорити продуктивність наступного ядра через забезпечення оптимального доступу до глобальної пам'яті.

Ядро 5 спочатку обчислює сили і моменти сил, що діють на частинки, а потім обчислює відповідні інкременти. Потім, для того, щоб обчислити силу і дипольне поле, що діє на частинку, здійснюється обхід октодерева. Щоб звести до мінімуму розбіжність ниток, дуже важливо, щоб просторово близькі частинки належали до однієї і тієї ж основи (напрямку розгалуження). У цьому випадку наступні нитки пройдуть через приблизно ті ж самі гілки дерев. Це вже було забезпечено ядром 4. Необхідні дані для розрахунку взаємодії будуть обрані в загальній пам'яті по першій нитці основи. Це дозволяє зменшити кількість звернень до пам'яті.

Нарешті, ядро 6 оновлює стан частинок за допомогою зміни позиції, і переорієнтує магнітний момент частинки на відповідну величину обчисленого інкременту. Вищеописаний алгоритм має багато переваг. Серед них: мінімальне розходження ниток і повна відсутність GPU / CPU передачі проміжних даних, бо передається лише фінальний результат; оптимальне використання глобальної пам'яті з мінімальною кількістю звернень, єдине поле даних повторного використання і мінімальна кількість блокувань. Усе це і дозволяє нам досягти істотного прискорення часу розрахунку. Зауважу ще раз, що більшого прискорення розрахунків можна домогтися використовуючи так званий швидкий мультипольний метод (fast multipole method) [162]. У рамках даної техніки час обчислень пропорційний N. На відміну від описаного алгоритму Барнса-Хата, де розраховується взаємодія або між частинкою і частинкою, або між частинкою і групою частинок, тут взаємодія розраховується відразу між групами частинок. Однак, незважаючи на очевидний виграш у часі, залишається відкритим питання про коректність обліку кореляцій магнітних моментів частинок в процесі утворення їх кластерів різної конфігурації. Тому в даній роботі було обрано саме алгоритм Барнса-Хата.

### 2.2.3. Верифікация та попередні чисельні результати

Запропонована модель разом з описаною технологією паралельних обчислень була реалізована в програмному коді на мові С ++ у середовищі Eclipse. За допомогою написаної програми можна не тільки задавати різні зовнішні і внутрішні параметри ансамблю і отримувати усереднені характеристики, але і візуалізувати динаміку наночастинок в рідині. Моделювання проведено на (I) ПК з Intel Xeon X5670 @ 2.93 ГГц (48 Гб RAM) і (II) GPU Tesla M2050. Хоча процесор має шість ядер, в моделюванні використовується лише одне ядро. Різний код був скомпільований за допомогою бібліотеки NVCC (версія 4.0) і GCC (версія 4.4.1) компіляторів. Оскільки не було ніякої необхідності для високоточних розрахунків, використовувлись змінні типу float одинарної точністю та ключ -use-fast-math. Також використовувся -O3 параметр оптимізації для прискорення програми. Нарешті, був використаний метод чисельного інтегрування стохастичних диференціальних рівнянь Ейлера-Мураями з часовим кроком  $\Delta \tilde{t} = 0.001$  для рівнянь (2.37) з врахуванням (2.39).

Час розрахунку одного кроку інтегрування для обох алгоритмів в залежності від N легко розрахувати, результати подано в Таблиці 2.1. Переваги GPU обчислень зростають зі збільшенням числа частинок. Для ансамблю  $N = 10^6$  частинок, прискорення від використання алгоритму Барнса-Хата ста-



Рис. 2.3. Зображення результату моделювання ансамблю з N частинок Моделювання виконувалось з використанням алгоритму Барнса-Хата: (a) N = 20000 (кубічна посудина з довжиною ребра L = 150R) і (b) моношар з N = 300 частинок. Параметри моделювання T = 300 K,  $M = 3.1 \cdot 10^5$  A/M, D = 5000 кг/м<sup>3</sup>, R = 10 нм.

новить майже 300 разів у порівнянні з виконанням оптимізованого All-Pairs алгоритму на тому ж GPU. Проте, для  $N = 10^3$ , All-Pairs алгоритм працює краще. Це пов'язано з додатковими розрахунками для побудови дерева, які в сумі переважують ефект прискорення для невеликого числа частинок. Варто зазначити, що на момент проведення досліджень  $N = 10^3$  був типовим масштабом моделювання ферорідин [141]. Із розвитком же обчислювальної бази, співвідношення виграшу в часі лише посилилось, бо сучасні відеокарти містять в декілька разів більшу кількість ядер, що забезпечує і кратне зменшення часу обчислень.

На рис. 2.3 показано миттєві конфігурації, отримані в ході моделювання для кубічного об'єму і для моношару. Для імітації моношару частинок, було використано прямокутний паралелепіпед висотою 2.1R. Параметри моделювання відповідають режиму, коли середня дипольная енергія набагато більша, ніж енергія теплових коливань. Тут чітко видно формування ланцюгових великомасштабних кластерів про яке зазначалося раніше [43].

Таблиця 2.1. Тривалість кроку інтегрування (мс) для оптимізованого All-Pairs алгоритму, який реалізований на CPU ( $AP_{CPU}$ ), GPU ( $AP_{GPU}$ ), та для CPU-орієнтованого ( $BH_{PU}$ ) та GPU-орієнтованого ( $BH_{GPU}$ ) алгоритму Барнса-Хата.

N	$AP_{CPU}$	$AP_{GPU}$	$BH_{GPU}$	$\frac{AP_{CPU}}{AP_{GPU}}$	$rac{AP_{CPU}}{BH_{GPU}}$	$rac{AP_{GPU}}{BH_{GPU}}$
$10^{3}$	34	0.7	2	49	17	0.35
$10^{4}$	3 470	20	6.5	174	534	3.1
$10^{5}$	392 000	1 830	54	214	7 259	33.9
$10^{6}$	39 281 250	184 330	621	213	63 214	297

### 2.2.4. Висновки до розділу 2

У даному розділі були одержані рівняння, що описують рух сферичної наночастинки з вмороженим магнітним моментом у в'язкій рідині. В такій моделі магнітний момент вважається нерухомим відносно кристалічної решітки. Було встановлено межі реалістичності цієї моделі для практично значимих випадків. Це дозволяє отримати в подальшому аналітичні і чисельні результати, оскільки записана система спрощених рівнянь придатна до стандартного чисельного моделювання.

Ефективна система рівнянь з адитивними шумами, які інтерепретуються в сенсі Іто, дозволяє застосування оптимальних чисельних алгоритмів для розв'язання рівнянь обертального руху с врахуванням теплових флуктуацій, а реалізована процедура за допомогою запису рівняння Фоккера-Планка, дозволить знайти наближені аналітичні вирази для статистичних характеристик вимушеного сферичного руху.

Розроблена техніка чисельного моделювання, яка ґрунтується на 1) вищезгаданих ефективних рівняннях руху, 2) технології паралельних обчислень CUDA на базі графічних процесорів, 3) алгоритмі Барнса-Хата для наближеного обчислення дипольних полів, дозволяє моделювати досить великі ансамблі (на десятки тисяч частинок) послуговуючись звичайними персональними комп'ютерами з досить поширеними та недорогими графічними адаптерами. Також підхід дозволяє адаптацію до використання хмарних безкоштовних ресурсів, що базуються на графічних процесорах.

# 3. ВЗАЄМОДІЯ НАНОЧАСТИНКИ З ВМОРОЖЕНИМ МОМЕНТОМ ІЗ ЗОВНІШНІМ ПЕРІОДИЧНИМ ПОЛЕМ: АНАЛІТИЧНІ РЕЗУЛЬТАТИ

## 3.1. Детерміністичний обертальний рух та потужність втрат наночастинки у періодичному зовнішньому полі

У найпростішому випадку дуже розрідженої ферорідини, коли кожна частинка знаходиться досить далеко від своїх сусідів і коли теплова енергія набагато менша за магнітну ( $\kappa \gg 1$ ), рівняння руху (3.2) можна розв'язати в деяких конкретних випадках. Одержані навіть у такому спрощеному наближенні результати мають пряме практичне значення. По-перше, вони можуть бути застосовані до розрахунку втрат потужності за зазначених обставин. Подруге, вони встановлюють граничні значення для стохастичного випадку та випадку врахування дипольної взаємодії між частинками. Останнє, але не менш важливе значення – це методологічна актуальність отриманих результатів. Наявність аналітичних рішень у найпростішому випадку дозволяє перевірити методи обробки більш складних випадків. Незважаючи на деякі результати для регулярної динаміки наночастинки з вмороженим моментом у в'язкій рідині, отриманих раніше (див. посилання [84,94,95]), спочатку доцільно розумно їх систематизувати та узагальнити.

## 3.1.1. Детерміністичне наближення: дія циркулярно-поляризованого поля

Припустимо, на частнику діє циркулярно поляризоване поле (2.3а), яке в безрозмірному вигляді запишеться як

$$\mathbf{h}^{ext}(t) = \mathbf{e}_x h_m \cos(\widetilde{\Omega}\widetilde{t}) + \mathbf{e}_y \varrho h_m \sin(\widetilde{\Omega}\widetilde{t}) + \mathbf{e}_z h_{z0}, \qquad (3.1)$$

Використовуючи умову  $\kappa \to \infty$  та представлення (2.3а) для цього поля, перетворюємо рівняння (3.2) у набір диференціальних рівнянь

$$\dot{\theta} = \frac{1}{\tau_1} \left( h_x \sin \theta \cos \phi + h_y \sin \theta \sin \phi + h_z \cos \theta \right) \cot \theta - \frac{1}{\tau_1} \frac{h_z}{\sin \theta} \quad (3.2a)$$

$$\dot{\phi} = \frac{1}{\tau_1 \sin^2 \theta} \left( h_y \cos \phi - h_x \sin \phi \right).$$
(3.2b)

де  $h_{0z} = H_{0z}/M$ . Один з можливих режимів руху – прецесія вектора **u** разом із зовнішнім полем  $\mathbf{h}^{ext}$ . У цьому випадку розв'язок рівнянь (3.2) подається у вигляді  $\varphi = \rho \widetilde{\Omega} \tilde{t} - \Phi$  і  $\theta = \Theta$ . Пряма підстановка останніх виразів у рівняння (3.2) дозволяє записати набір алгебраїчних рівнянь

$$h_m \cos \Theta \cos \Phi - h_{0z} \sin \Theta = 0,$$

$$\widetilde{\Omega} \sin \Theta - h_m \sin \Phi = 0,$$
(3.3)

розв'язання якої дасть вичерпну інформацію про прецесійний режим. Важливо зауважити, прецесія буде стабільною за умови  $h_{0z} \neq 0$  або коли  $h_{0z} = 0$  та  $h_m \tilde{\Omega} < 1$ . З використанням виразів (3.3) та (2.31), прямі розрахунки дозволяють одержати:

$$\widetilde{Q} = \widetilde{\Omega}^2 \sin^2 \Theta. \tag{3.4}$$

Коли статичне поле відсутнє ( $h_{0z} = 0$ ), то вектор **u** обертається у xy площині, а вираз (3.4) спрощується до  $\tilde{Q} = \tilde{\Omega}^2$ . Примітно, що втрати потужності тут не залежать від амплітуди поля  $h_m$ .

Користуючись системою (3.3) та за умови  $h_{z0} > 0$ , легко може бути показано, що стаціонарний розв'язок детерміністичних рівнянь руху (3.2) можна записати як

$$\begin{pmatrix} \Theta \\ \Phi \end{pmatrix} = \arcsin\left[\frac{1}{\sqrt{2}}\sqrt{\Gamma^2 - \sqrt{\Gamma^4 - 4\widetilde{\Omega}^2 h_m^2}} \begin{pmatrix} 1/\widetilde{\Omega} \\ 1/h_m \end{pmatrix}\right]$$
(3.5)

 $(\Gamma^2 = \tilde{\Omega}^2 + h_m^2 + h_{z0}^2)$ . Також можна довести, що цей розв'язок є стійким по відношенню до малих збурень кутів  $\Theta$  nf  $\Phi$ . Таким чином, розв'язок вихідних диференціальних рівнянь (3.2) якщо  $h_{0z} > 0$  завжди прямує до стаціонарних розв'язків, що задається рівняннями (3.3) коли час прямує до нескінченності  $(\tilde{t} \to \infty$ . Зокрема, *z*-компонента безрозмірної намагніченості наночастинок на великих часових проміжках в  $m_z = \cos \Theta$  визначається як

$$m_z = \frac{1}{\sqrt{2\widetilde{\Omega}}} \sqrt{2\widetilde{\Omega}^2 - \Gamma^2 + \sqrt{\Gamma^4 - 4\widetilde{\Omega}^2 h_m^2}}.$$
(3.6)

Загалом,  $m_z$  як функція параметрів  $\widetilde{\Omega}$ ,  $h_m$  and  $h_{z0}$  демонструє схильну до насичення поведінку:  $m_z \to h_z/\sqrt{h_m^2 + h_{z0}^2}$  як  $\widetilde{\Omega} \to 0$ ,  $m_z \to 1$  як  $\widetilde{\Omega} \to \infty$ ,  $h_m \to 0$  або  $h_{z0} \to \infty$ , та  $m_z \to 0$  як  $h_m \to \infty$ . В той самий час, залежність  $m_z$ оп  $\widetilde{\Omega}$  та  $h_m$  за умови  $h_z \to 0$  не є абсолютно очевидною. Справді, з рівняння (3.6) можна показати

$$\mu = \lim_{h_{z0} \to 0} m_z = \begin{cases} 0, & \widetilde{\Omega}/h_m < 1\\ \sqrt{1 - (\widetilde{\Omega}/h_m)^2}, & \widetilde{\Omega}/h_m \ge 1, \end{cases}$$
(3.7)

тобто, намагніченість наночастинки  $\mu$  вздовж вісі z залежить від співвідношення  $\tilde{\Omega}/h_m$  та, що більш важливо, поведінка  $\mu$  в областях  $\tilde{\Omega}/h_m < 1$  та  $\tilde{\Omega}/h_m \geq 1$  є зовсім різною. Як проілюстровано на рисунку 3.1, чисельний розв'язок вихідних диференціальних рівнянь (3.2) підтверджує зазначені аналітичні результати. Тут чисельні розрахунки проводились для наночастинок магнетиту ( $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), що завислі у воді. У цьому випадку намагніченість насичення наночастинок, динамічна в'язкість води і критична частота  $\Omega_{cr}$  за кімнатної температури T = 298 К мають значення відповідно  $4\pi M = 3.89 \times 10^3$  Гс,  $\eta = 8.90 \times 10^{-3}$  П та  $\Omega_{cr} = 1.79 \times 10^6$  с<sup>-1</sup>.



Рис. 3.1. Намагніченість наночастинки  $\mu$  вздовж вісі z та середня кутова швидкість обертання  $\varpi$  як функція від співвідношення частоти та амплітуди  $\widetilde{\Omega}/h_m$ . Суцільна крива подає аналітичні результати (3.7) та (3.9), а маркери показують відповідні чисельні значення отримані за наступних умов  $\tilde{t} = 10^7$ шляхом чисельного розв'язку рівняння (3.2) для частинок магнетиту. Чисельні значення  $\mu$  і  $\varpi$ , були отримані для  $h_z = 10^{-3}$  та  $h_{z0} = 0$ , відповідно, та не залежать від початкових значень полярного та азимутального кутів  $\theta(0)$  та  $\psi(0)$ .

Рівняння (3.7) у випадку  $h_{z0} = 0$  має більш простий, але цікавий розв'язок. Якщо  $\widetilde{\Omega}/h_m < 1$  то з рівнянь (3.3) та (3.5) можна отримати

$$\Theta = \frac{\pi}{2}, \quad \Phi = \arcsin\left(\frac{\widetilde{\Omega}}{h_m}\right),$$
(3.8)

та, як і у попередньому випадку, ці розв'язки є стійкими. На противагу, якщо справедлива умова  $\widetilde{\Omega}/h_m \geq 1$  то тоді усталені роз'вязки (3.3) є періодичними у часі з періодом  $\tilde{t}_{\rm st} = \pi/\sqrt{\widetilde{\Omega}^2 - h_m^2}$ . Якщо більш точно, то в цьому випадку кути  $\theta(\tilde{t})$  і  $\psi(\tilde{t})$  змінюються у спосіб  $\theta(\tilde{t} + \tilde{t}_{\rm st}) = \theta(\tilde{t})$  та  $\psi(\tilde{t} + \tilde{t}_{\rm st}) = \pi + \psi(\tilde{t})$ . Використовуючи ці результати, видається можливим визначити результуючу кутову швидкість частинки у такому вигляді  $\varpi = (1/\widetilde{\Omega}) \lim_{\tilde{t}\to\infty} \phi(\tilde{t})/\tilde{t}$ . Далі, оскільки  $\phi(\tilde{t}) = \widetilde{\Omega}\tilde{t} - \psi(\tilde{t})$ , з наведеного означення середньої швидкості  $\varpi = 1$ for  $\widetilde{\Omega}/h_m < 1$  та  $\varpi = 1 - \pi/(\widetilde{\Omega}\tilde{t}_{\rm st})$  для  $\widetilde{\Omega}/h_m \geq 1$ , або,

$$\varpi = \begin{cases} 1, & \widetilde{\Omega}/h_m < 1\\ 1 - \sqrt{1 - (\widetilde{\Omega}/h_m)^2}, & \widetilde{\Omega}/h_m \ge 1. \end{cases}$$
(3.9)



Рис. 3.2. Приклад усталених обертальних траєкторій, що показують залежність від початкового значення полярного кута  $\theta(0)$ . Чисельні дані отримані шляхом розв'язання рівняння (3.2) для параметрів  $\tilde{\Omega} = 2.5$ ,  $h_m = 1$ ,  $h_{z0} = 0$ ,  $\psi(0) = 0$ , і  $\theta(0) = 0.4$  (a),  $\theta(0) = \pi/2$  (b),  $\theta(0) = 2.7$  (c). На рисунках кути виміряні в радіанах, кут відставання  $\psi(\tilde{t})$  приведений до інтервалу  $[0, \pi]$ , стрілки показують часову еволюцію з часом, а виродження траєкторії b відповідає обертанню частинки у площині xy [тобто,  $\theta(\tilde{t}) = \pi/2$ ].

Така залежність швидкості  $\varpi$  від  $\tilde{\Omega}/h_m$  також підтверджується чисельним моделюванням, як показано на рисунку 3.1.

Порівнянням виразу (3.9) зі співвідношенням (3.7), можна простежити, що намагніченість наночастинки  $\mu$  та її середня кутова швидкість  $\varpi$  пов'язані простим, але вартим відзнаки способом:  $\mu + \varpi = 1$ . Слід зазначити, що, хоча стаціонарна динаміка магнітного моменту **m** при  $h_{z0} = 0$  and  $\tilde{\Omega}/h_m \ge 1$  може сильно залежати від початкового положення цього вектору (див. Рис. 3.2 для ілюстрації), середня кутова швидкість  $\varpi$  від початкового положення не залежить. Тому, умова  $\mu + \varpi = 1$  є універсальною з тієї точки зору, що визначається виключно відношенням частоти і амплітуди зовнішнього поля  $\tilde{\Omega}/h_m$  та не залежить від початкових умов  $\theta(0)$  і  $\psi(0)$ .

Щоб уникнути плутанини у тлумаченні вищезазначеної умови, спочатку нагадаємо, що за умови  $h_{z0} > 0$  стаціонарні розв'язки диференціальних рівнянь (3.2), що задаються алгебраїчним рівнянням (3.3) є стійкими для усіх значень відношення  $\tilde{\Omega}/h_m$ . У випадку, коли  $m_z$  визначається рівнянням (3.6),  $\varpi = 1$  та, якщо на додачу,  $m_z$  підкоряється виразу (3.7) і  $h_{z0}$  приймає невелику але ненульову величину. На противагу, у випадку, коли  $h_z = 0$ , стаціонарний розв'язок (3.8) рівняння (3.3) є стабільним за умови  $\tilde{\Omega}/h_m < 1$  і ці рівняння за умови  $\tilde{\Omega}/h_m \geq 1$  мають періодичні сталі розв'язки, то вираз для середньої швидкості задається виразом (3.9), тоді коли намагніченість вздовж вісі z відсутня, або  $\mu = 0$ . Останній результат є прямим наслідком виразу  $\mu = (1/\tilde{t}_{st}) \int_0^{\tilde{t}_{st}} d\tilde{t} \cos \theta(\tilde{t})$ , який враховує всі існуючі ров'язки рівняння (3.3) за умови  $\tilde{\Omega}/h_m \geq 1$ , та показує (якщо  $h_{z0} = 0$ ), що жодне підмагнічування, зумовлене динамічними ефектами, відсутнє. Таким чином, умова  $\mu + \varpi = 1$  є справедливою коли величина  $\mu$  пов'язана з  $m_z$ , коли  $h_{z0} \ll 1$  (але не за умови  $h_{z0} = 0$ ), а величина  $\varpi$  розраховується якщо  $h_{z0} = 0$ . Зазначимо в цьому контексті, що режим обертання наночастинок, що існує при нескінченно малих значеннях сталого поля  $h_{z0}$ , повністю руйнується тепловими флуктуаціями.

### 3.1.2. Детерміністичне наближення: дія лінійно-поляризованого поля

Для спрощення подальшого аналізу, розглянемо зовнішнє поле типу (2.3b), що у безрозмірному вигляді подається як

$$\mathbf{h}(t) = \mathbf{e}_z h_m \cos(\widetilde{\Omega} \tilde{t}). \tag{3.10}$$

Оскільки, відповідно до (2.3b), таке поле виконує коливання вздовж вісі z, вираз (3.2b) у випадку  $\kappa \to \infty$  спрощується до  $\dot{\varphi} = 0$ , тобто азимутальний кут  $\varphi$  не демонструє залежності від часу. Підстановкою виразу (2.3b) у рівняння (3.2a) та послуговуючись основною умовою відсутності теплового шуму  $\kappa \to \infty$ , можна одержати

$$\frac{d\theta}{d\tilde{t}} = -h_m \sin\theta \cos(\tilde{\Omega}\tilde{t}). \tag{3.11}$$

Рівняння (3.11) може бути проінтегровано безпосередньо, в результаті чого одержуємо

$$\tan(\theta/2) = \tan(\theta_0/2) \exp\left[-\frac{h_m}{\widetilde{\Omega}}\sin(\widetilde{\Omega}\tilde{t})\right], \qquad (3.12)$$

де  $\theta_0$  є полярний кут, що характеризує початкове положення вектора **u**. Як легко простежити з рівняння (3.12), масштаб коливань частинок дуже чутливий до співвідношення  $h_m/\tilde{\Omega}$ . Якщо  $h_m/\tilde{\Omega} \gg 1$ , переорієнтація частинок вздовж зовнішнього поля виконується досить швидко, і частинка практично знерухомлена протягом більшої частини періоду поля. Навпаки, коли  $h_m/\tilde{\Omega} \ll 1$ , лише невеликі коливання виконуються навколо початкового положення, яке визначається параметром  $\theta_0$ .

Послуговуючись виразом (2.31), середнє значення втрати потужності під дією лінійно поляризованою поля можна записати у вигляді

$$\widetilde{Q} = \frac{\widetilde{\Omega}^2 h_m}{2\pi} \int_0^{\widetilde{\mathcal{T}}} d\widetilde{t} \tanh\left[\frac{h_m}{\widetilde{\Omega}}\sin(\widetilde{\Omega}\widetilde{t}) - \frac{x_0}{2}\right]\sin(\widetilde{\Omega}\widetilde{t}), \qquad (3.13)$$

де  $x_0 = \ln \left( \tan^2(\theta_0/2) \right)$  – константа, визначена початковим станом вектора **u**. Незважаючи на те, що точне інтегрування тут неможливе, значення втрат потужності, що задається виразом (3.13) можна оцінити приблизно в наближеннях дуже низьких і дуже високих частот. Зокрема, якщо  $h_m/\widetilde{\Omega} \gg 1$ , втрати потужності виявляють лінійну залежність від частоти та амплітуди поля,  $\widetilde{Q}|_{h_m/\widetilde{\Omega}\to\infty}\to h_m\widetilde{\Omega}/\pi$ . Ще одна особливість цієї асимптотики — незалежність від початкового положення и, що пояснюється наступним чином. Під час польового періоду у частинки є достатньо часу, щоб здійснити дві переорієнтації разом із зовнішнім магнітним полем (2.3b) з будь якого іншого початкового положення. Тому стаціонарний режим не чутливий до  $\theta_0$ . Високочастотна асимптотика  $(h_m/\widetilde{\Omega} \ll 1)$  не залежить від частоти поля,  $\left. \widetilde{Q} \right|_{h_m/\widetilde{\Omega} \to 0} \to (1/2) h_m^2 \cosh^{-2} x_0$ . Незалежність від частоти можна пояснити наступним чином. Коли виконується умова  $h_m/\widetilde{\Omega} \to 0$ , коливання мають малу амплітуду. Втрати потужності визначаються амплітудою і частотою коливань. Остання дорівнює частоті зовнішнього поля, тоді як амплітуда оберненопрпорційна до неї. А збільшення частоти поля призводить до пропорційного зменшення амплітуди коливань **u**, що компенсує збільшення втрат потужності.

## 3.1.3. Детерміністичне наближення: межа великих частот та лінійне наближення

Нарешті, розглянемо граничний випадок, коли вектор **u** виконує обертальні коливання у невеликому околі навколо його початкового положення, визначеного кутами  $\theta_0$  та  $\varphi_0$  (див. Рис. 3.3). Ця ситуація має місце за досить малого співвідношення амплітуди та частоти поля  $(h_m/\tilde{\Omega} \ll 1)$ . Тоді ми припускаємо, що зовнішнє поле визначається як (2.3a), але крім того, припускається, що  $h_{0z} = 0$  і  $-1 < \rho < 1$ , що охоплює лінійну, еліптичну та колову поляризацію зовнішнього поля  $\mathbf{h}^{ext}$ . Розв'язання основних рівнянь (2.5) у випадку без шуму можна знайти у лінійному наближенні. Використовувана тут процедура лінеаризації схожа з описаною у роботі [176] і полягає в наступному. Вводиться нова системи xyz. У цій новій системі координат вектор **u** може бути записаний у лінійному наближенні як

$$\mathbf{u} = \mathbf{e}_{x'} u_{x'} + \mathbf{e}_{y'} u_{y'} + \mathbf{e}_{z'}, \tag{3.14}$$

де  $\mathbf{e}_{x'}, \mathbf{e}_{y'}, \mathbf{e}_{z'}$  є одиничним вектором штрихованої системи координат x'y'z'.

Зовнішнє поле  $\mathbf{h}^{ext}$  в штрихованій системі координат x'y'z' можна подати з використанням відомої матриці повороту наступним чином

$$\mathbf{h}^{ext'} = \mathbf{C} \cdot \begin{pmatrix} h_m \cos(\widetilde{\Omega}\tilde{t}) \\ \varrho h_m \sin(\widetilde{\Omega}\tilde{t}) \\ 0 \end{pmatrix}, \qquad (3.15)$$

$$\mathbf{C} = \begin{pmatrix} \cos\theta_0 \cos\varphi_0 & \cos\theta_0 \sin\varphi_0 & -\sin\theta_0 \\ -\sin\varphi_0 & \cos\varphi_0 & 0 \\ \sin\theta_0 \cos\varphi_0 & \sin\theta_0 \sin\varphi_0 & \cos\theta_0 \end{pmatrix}, \quad (3.16)$$



Рис. 3.3. Схематичне зображення наночастинки та систем координат, що використовуються для опису високочастотного наближення.

Підстановкою рівняння (3.15) у (2.5) у припущенні, що  $u_{x'}, u_{y'} \sim h_m$  та нехтуючи доданками, що містять  $h_m$  в будь-якому степені, більшим одиниці, отримуємо лінеарізовану систему рівнянь для вектора **u** у такому вигляді

$$\frac{du_{x'}}{d\tilde{t}} = \cos\theta_0 \cos\varphi_0 \cos(\widetilde{\Omega}\tilde{t}) + \rho\cos\theta_0 \sin\varphi_0 \sin(\widetilde{\Omega}\tilde{t}), 
\frac{du_{y'}}{d\tilde{t}} = -\sin\varphi_0 \cos(\widetilde{\Omega}\tilde{t}) + \rho\cos\varphi_0 \sin(\widetilde{\Omega}\tilde{t}).$$
(3.17)

Тоді ми використовуємо стандартне тригонометричне подання розв'язків рівнянь (3.17)

$$u_{x'} = a\cos(\widetilde{\Omega}\tilde{t}) + b\sin(\widetilde{\Omega}\tilde{t}),$$
  

$$u_{y'} = c\cos(\widetilde{\Omega}\tilde{t}) + d\sin(\widetilde{\Omega}\tilde{t}).$$
(3.18)

Після прямої підстановки виразів (3.18) у рівняння (3.17), можна одержати невідомі константи

$$a = h_m \widetilde{\Omega}^{-1} \sin \varphi_0,$$
  

$$b = h_m \widetilde{\Omega}^{-1} \cos \theta_0 \cos \varphi_0,$$
  

$$c = -h_m \widetilde{\Omega}^{-1} \cos \varphi_0,$$
  

$$d = h_m \widetilde{\Omega}^{-1} \cos \theta_0 \sin \varphi_0.$$
  
(3.19)

Наостанок, пряме інтегрування (2.31) з підстановкою (3.18) та (3.19) дозволяє отримати короткий вираз для потужності втрат [84]

$$\widetilde{Q} = \frac{1}{2}h_m^2 D, \qquad (3.20)$$

де

$$D = \cos^2 \theta_0 (\cos^2 \varphi_0 + \varrho^2 \sin^2 \varphi_0) + \varrho^2 \cos^2 \varphi_0 + \sin^2 \varphi_0.$$
 (3.21)

Природно, що рівняння (3.13) асимптотично співпадає з (3.20) з точністю до констант, що задаються початковим положенням.

В якості проміжного висновку варто зазначити, що результати отримані в динамічному наближенні, встановлюють граничні значення втрат потужності, що будуть отримані у інших наближеннях. Але, як буде показано нижче, ці оцінки для високих частот можуть мати практичне значення, оскільки дуже близькі до істинних. Також, варто підкреслити, що вирази, знайдені в динамічному наближенні, сильно залежать від початкових умов для всіх випадків, виключаючи однорідний режим прецесії під дією циркулярно поляризованого поля. І головна особливість полягає в тому, що частотна поведінка втрат потужності не схожа на аналогічну поведінку, отриману для випадку магнітної динаміки всередині одновісної частинки, яка жорстко фіксована в твердій матриці [176]. По-перше, для низьких частот залежності  $\widetilde{Q}(\widetilde{\Omega})$  досить різні для різних типів поляризації поля. Якщо прикладається циркулярно поляризоване поле, то  $\tilde{Q} = \tilde{\Omega}^2$ , тоді як  $\tilde{Q} \sim \tilde{\Omega}h_m$ , якщо прикладене лінійно поляризоване поле. По-друге, для високих частот  $\tilde{Q}(\tilde{\Omega})$  демонструє однаковий тренд до насичення для всіх типів поляризації, а насичене значення не є нульовим, але його значення для циркулярно-поляризованого поля, як мінімум, вдвічі більше, ніж для лінійно поляризованого, залежно від початкового положення вектора намагніченості **u**.

### 3.2. Вплив термостату на обертальну динаміку наночастинки

Очевидно, що теплові флуктуації розмивають обертальні траєкторії наночастинки і пригнічують її відгук на зовнішнє поле. Це є причиною падіння втрат потужності з температурою. І швидкість цього падіння викликає великий інтерес як з теоретичного, так і з практичного погляду. З цією метою пряме інтегрування рівнянь руху, які є стохастичними, тут не підходить. Тому аналітичні оцінки проводяться статистично, використовуючи функцію щільності ймовірності та формалізму рівняння Фоккера-Планка, див. рівняння (2.20). Через труднощі в точному інтегруванні рівняння (2.20) у випадку дії змінного періодичного поля, його розв'язок часто шукають в різних наближеннях, таких як наближення ефективного поля [44], де форма розподілу відповідає розподілу в статичному полі або стаціонарний розв'язок в лінійному наближенні відносно доданків з  $\kappa \widetilde{\Omega}$  [3]. Примітно, що у випадку дії лінійно-поляризованого поля (2.3b), рівняння Фоккера-Планка (2.20) можна знайти точно у вигляді рядів [97]. Тут ми підбиваємо підсумки всіх результатів у контексті проблеми втрат потужності та підтверджуємо їх чисельно, на базі виведених ефективних рівнянь (2.28).

## 3.2.1. Стохастичне наближення: дія циркулярно-поляризованого поля

У випадку дії циркулярно-поляризованого поля, наближений розв'язок рівняння Фоккера-Планка (2.20) заснований на синхронному (в середньому сенсі) обертанні **m** разом з  $\mathbf{h}^{ext}$  [3]. Перехід від азимутального кута  $\phi$  до кута відставання  $\psi = \phi - \tilde{\Omega}\tilde{t}$  дозволяє нам подати стаціонарний розв'язок  $P_{\rm st}$  рівняння Фоккера-Планка (2.20) як функцію двох змінних  $P_{\rm st} = P_{\rm st}(\theta, \psi)$ . Оскільки  $\partial P_{\rm st}/\partial \tilde{t} = \tilde{\Omega} \partial P_{\rm st}/\partial \psi$ , можна знайти рівняння для стаціонарної щільності ймовірності  $P_{\rm st}$  безпосередньо з (2.20)

$$\widetilde{\Omega} \frac{\partial P_{\rm st}}{\partial \psi} + \\ + \frac{\partial}{\partial \theta} \left[ h_m \cos \psi \cos \theta - h_z \sin \theta + \frac{\cot \theta}{\kappa} \right] P_{\rm st} \\ + \sin^2 \theta \frac{\partial}{\partial \psi} h_m \sin \psi P_{\rm st} - \frac{1}{\kappa} \frac{\partial^2 P_{\rm st}}{\partial \theta^2} \\ - \frac{1}{\kappa} \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2 P_{\rm st}}{\partial \psi^2} = 0.$$
(3.22)

За умови, що  $\kappa \widetilde{\Omega} \ll 1$ , стаціонарна щільність ймовірності  $P_{\rm st}$  може бути подана в лінійному наближенні відносно до доданків пропорційних до  $\kappa \widetilde{\Omega}$ 

$$P_{\rm st} = (1 + \kappa \widetilde{\Omega} F) P_0, \qquad (3.23)$$

де

$$P_{0} = \frac{1}{Z} \sin \theta \exp \left[ \kappa h_{m} (\sin \theta \cos \psi - h_{z} \cos \theta) \right],$$
  

$$Z = \int_{0}^{\pi} d\Theta \int_{0}^{2\pi} d\psi \sin \theta \exp \left[ \kappa h_{m} (\sin \theta \cos \psi - h_{z} \cos \theta) \right].$$
(3.24)

Надалі обмежимося випадком, коли  $h_z = 0$  і  $\kappa h_m \ll 1$ . Користуючись виразом (3.24) та (3.22), легко показати, що з точністю до членів першого порядку щодо  $\kappa h_m$  невідома функція F визначається рівнянням

$$\frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial\theta} \left( \sin\theta \frac{\partial F}{\partial\theta} \right) + \frac{1}{\sin^2\theta} \frac{\partial^2 F}{\partial\psi^2} = -\kappa h_m \sin\theta \sin\psi.$$
(3.25)

Розв'язок цього рівняння досить простий

$$F = \frac{1}{2}\kappa h_m \sin\theta \sin\psi.$$
(3.26)

Враховуючи, що з квадратичною точністю щодо  $\kappa h_m$ , постійну нормалізації в рівнянні (3.24) можна записати як  $Z = 4\pi (1 + \kappa^2 h_m^2/6)$  і тоді

$$P_{0} = \frac{\sin\theta}{4\pi} \Big[ 1 + \kappa h_{m} \sin\theta \cos\psi \\ - \frac{\kappa^{2}h_{m}^{2}}{6} \left( 1 - 3\sin^{2}\theta \cos^{2}\psi \right) \Big], \qquad (3.27)$$

з (3.23) можна легко отримати

$$P_{\rm st} = \frac{\sin\theta}{4\pi} \bigg[ 1 + \kappa h_m \sin\theta \cos\psi - \frac{\kappa^2 h_m^2}{6} \big( 1 - 3\sin^2\theta \cos^2\psi \big) \bigg] \\ + \frac{1}{8\pi} \kappa^2 h_m \widetilde{\Omega} \sin^2\theta \sin\psi.$$
(3.28)

Втрати потужності q у випадку дії циркулярно-поляризованого поля також отримуються прямою підстановкою виразу (3.28) у (2.34). Зрештою, отримуємо наступну формулу

$$q = \frac{1}{6} h_m^2 \widetilde{\Omega}^2 \kappa^2. \tag{3.29}$$

Головною особливістю останнього виразу є квадратична залежність від амплітуди  $h_m$ , що не характерно для випадку відсутності шуму, див. вираз (3.4). Тут уваги заслуговує квадратична залежність саме від параметру  $\kappa$  і означає, що втрати потужності залежать від температури як  $T^{-2}$ . Тут підкреслюємо, що (3.29) не застосовується для малих інтенсивностей теплового шуму, коли  $\kappa \gg 1$ .

Щоб перевірити наші аналітичні висновки та побачити область застосування отриманого результату, було виконано моделювання на основі чисельного інтегрування ефективних стохастичних рівнянь (2.28). Для верифікації нашого чисельного інструменту спочатку підрахуємо величину

$$\Sigma = \frac{8\pi}{\kappa^2 h_m^2} (P_{\rm st} - P_0)|_{\Psi = \pi/2}.$$
(3.30)

Відповідно до рівняння (3.27), ця величина характеризує різницю між усталеною (коли  $\tilde{\Omega} \neq 0$ ) та рівноважною (коли  $\tilde{\Omega} = 0$ ) щільностями ймовірності  $\Psi = \pi/2$  та виражається як  $\Sigma = (\tilde{\Omega}/h_m) \sin^2 \Theta$ . Чисельні результати для  $\Sigma$  як функції кута  $\Theta$  одержані шляхом чисельного розв'язання рівнянь (2.28) для  $\tau_1 = 5.56 \times 10^{-7}$  с,  $\kappa = 8$ ,  $h_{z0} = 0$  та різних значень характеристик поля  $h_m$  and  $\tilde{\Omega}$ . Розв'язки цих рівнянь, або пари кутів  $\theta_n = \theta(\tilde{t}_n)$ алd  $\psi_n = \psi(\tilde{t}_n)$ , визначаються для моментів часу  $\tilde{t}_n = 10^5 + n\Delta \tilde{t}$  (тут  $10^5$ – так званий час очікування, необхідний для завершення перехідних процесів та досягнення усталеного режиму),  $n = \overline{1, N}$ ,  $N = 10^{11}$  та  $\Delta \tilde{t} = 10^{-2}$ . Нарешті, чисельні значення щільності ймовірності  $P_{\rm st}|_{\Psi=\pi/2}$  та  $P_0|_{\Psi=\pi/2}$  вираховуються як  $N_{\mathcal{M}}|_{\tilde{\Omega}\neq 0}/(\Delta \Theta \Delta \Psi N)$  та  $N_{\mathcal{M}}|_{\tilde{\Omega}=0}/(\Delta \Theta \Delta \Psi N)$ , відповідно. Тут,  $N_{\mathcal{M}}$  число пар (серед загальної кількості N пар), що задовольняють умовам  $\theta_n \in [\mathcal{M}\Delta\Theta - \Delta\Theta, \mathcal{M}\Delta\Theta]$  та  $\psi_n \in [\pi/2 - \Delta \Psi/2, \pi/2 + \Delta \Psi/2)$ , в яких параметри  $\mathcal{M}$ ,  $\Delta\Theta$  та  $\Delta\Psi$  вибрані як  $\mathcal{M} = \overline{1,155}$  алd  $\Delta\Theta = \Delta\Psi = \pi/155$  (також відзначимо що  $\sum_{\mathcal{M}} N_{\mathcal{M}} = N$ ).

Як показано на рисунку 3.4, результати моделювання  $\Theta$ -залежності  $\Sigma$  дуже добре узгоджуються з теоретичними прогнозами, що дозволяє зробити такі висновки. По-перше, роз'вязок (3.27) рівняння Фокера-Планка (3.22) правильно описує довготривалу поведінку обертального руху наночастинок в в'язкій рідині. По-друге, оскільки різниця  $(P_{\rm st} - P_0)|_{\Psi=\pi/2}$  має другий порядок точності відносно  $\kappa h_m$ , ефективні рівняння Ланжевена (2.28) можуть бути використані для прогнозування і дослідження більш "тонких"ефектів у обертовому русі. І по-третє, подання  $P_{\rm st} = P_{\rm st}(\Theta, \Psi)$ , що є ключовим припущенням нашого аналізу, виконується не тільки на  $\tilde{\Omega}/h_m < 1$  (як це очікується з розгляду детерміністичного наближення, коли тепловими флуктуаціями знехтувано), але й також



Рис. 3.4. Залежність  $\Sigma$  від  $\Theta$  для  $\widetilde{\Omega}/h_m = 0.5$  (1) та  $\widetilde{\Omega}/h_m = 1.5$  (2). Суцільна крива відповідає теоретичним результатам  $\Sigma = (\widetilde{\Omega}/h_m) \sin^2 \Theta$  а маркери відповідають значенням  $\Sigma$ , знайденим чисельно. Останні отримані з використанням рівняння (2.28) для  $h_m = 2.5 \times 10^{-2}$ ,  $\widetilde{\Omega} = 1.25 \times 10^{-2}$  (1) та  $\widetilde{\Omega} = 3.75 \times 10^{-2}$ (2); інші параметри зазначені за текстом.

коли  $\widetilde{\Omega}/h_m \geq 1$ . Останнє означає, що можлива наявність неоднорідної прецесії не впливає на сталу щільність ймовірності  $P_{\rm st}$ .

Чисельним розв'язанням рівняння (2.28) далі визначаються середні значення намагніченості наночастинки та середнє значення її кутової швидкості,  $\langle \mu \rangle$  та  $\langle \varpi \rangle$ . Обчислення проводились у такий спосіб:  $\langle \mu \rangle = (1/l) \sum_{i=1}^{l} \cos \theta_i$ та  $\langle \varpi \rangle = 1 - (1/l) \sum_{i=1}^{l} \psi_i / (\tilde{\Omega} \tilde{t}_{sim})$ , де  $\theta_i = \theta_i (\tilde{t}_{sim})$  та  $\psi_i = \psi_i (\tilde{t}_{sim})$  значення кутових координат на *i*-му запуску,  $\tilde{t}_{sim}$  час моделювання, та l є кількістю запусків процедури чисельного розрахунку. У даному випадку були обрані такі значення параметрів:  $\tilde{t}_{sim} = 10^6$  та  $l = 10^5$ ; інші ж параметри аналогічні тим, що використовувалися під час одержання даних для рисунка 3.1. Тут важливо зазначити, що коли  $\tilde{t}_{sim}$  приймає достатньо великі значення, статистичні властивості кутів  $\theta_i$  та  $\psi_i$  не залежать від початкових умов.

Далі, з використанням аналогічного підходу було встановлено, що  $\langle \mu \rangle = 0$ для всіх скінчених значень парамтера  $\kappa$ , який, нагадаємо, оберненопропорційний до температури. На перший погляд, цей результат не узгоджується з поведінкою  $\mu$  для детерміністичного наближення (коли  $\kappa = \infty$ ), див. Рис. 3.1, оскільки  $\langle \mu \rangle$  для великих значень  $\kappa$  мають прямувати до  $\mu$ . Та якщо  $\mu$  визначається чисельним способом для малих (але ненульових) значень зовнішнього сталого поля  $h_{z0}$  (або,  $h_{z0} = 10^{-3}$  на рисунку 3.1), то, з рештою,  $\langle \mu \rangle$  за  $\kappa \gg 1/h_{z0}$  й справді прямує до  $\mu$ . Однак, коли  $\mu$  є математично визначеною величиною за умови  $h_z \to 0$ , таке трактування безпідставне для будь-яких скінчених  $\kappa$ . Фактично, періодичний режим обертання наночастинки, який існує у наближенні нульової температури за умови  $h_{z0} = 0$  та  $\tilde{\Omega}/h_m \ge 1$ , руйнується:  $\lim_{h_{z0}\to 0^{\pm}} m_z = \pm \mu$ . Термічний крутний момент довільної потужності повністю руйнує цей режим, приводячи до того, що  $\langle \mu \rangle = 0$ .

Вплив теплового крутного моменту на середню кутову частоту обертання наночастинки, що збуджується зовнішнім циркулярно-поляризованим полем (за умови  $h_{z0} = 0$ ), проілюстровано на Рис. 3.5. Як видно, середня кутова частота  $\langle \varpi \rangle$  сильно залежить від теплового крутного моменту (чим менше параметр  $\kappa$ , тим більше випадковий крутний момент) та виявляє досить виражену залежність від частоти зовнішнього поля  $\tilde{\Omega}$ . Оскільки виконується умова  $\langle \tilde{\mu}_{1,2}(\tilde{t}) \rangle = 0$ , див. рівняння (2.28), залежність  $\langle \varpi \rangle$  від  $\kappa$  та  $\tilde{\Omega}$  є виключно нелінійним ефектом. Найбільш яскравим його проявом є те, що теплові флуктуації можуть збільшувати і зменшувати кутову частоту наночастинок порівняно з детермінованим випадком. Зокрема, якщо  $\tilde{\Omega}_c$  є розв'язком рівняння  $\epsilon = 0$ ( $\epsilon = \langle \varpi \rangle|_{\kappa=\infty} - \langle \varpi \rangle$ ) відносно  $\tilde{\Omega}$ , тоді теплові коливання зменшують частоту обертання ( $\epsilon > 0$ ) коли  $\tilde{\Omega} < \tilde{\Omega}_c$ , та збільшують їх ( $\epsilon < 0$ ) коли  $\tilde{\Omega} > \tilde{\Omega}_c$  (див. Рис. 3.6). Зазначимо, що  $\tilde{\Omega}_c$  зростає разом з тим як |min  $\epsilon$ | зменшується зі зменшенням  $\kappa$ , та  $\epsilon$  прямує до нуля зі збільшенням частоти  $\tilde{\Omega}$ .

Далі, прямим чисельним розв'язком ефективних рівнянь Ланжевена (2.28), досліджуємо роль теплового випадкового обертального моменту в динаміці наночастинок для випадку  $h_{z0} \neq 0$ . Перш ніж приступити до аналізу теплових ефектів, нагадаємо, що в детерміністичному випадку стаціонарна динаміка наночастинок має прецесійний характер, що описується постійним кутом прецесії та кутом відставання (3.5). Як наслідок, в цьому випадку безрозмірна швидкість обертання  $\varpi = 1$ , або можна казати, що частинка обертається з частотою



Рис. 3.5. Середнє значення безрозмірної кутової швидкості обертання наночастинки  $\langle \varpi \rangle$ , як функція безрозмірної частоти  $\tilde{\Omega}$  якщо  $h_{z0} = 0$ ,  $h_m = 1$  та різних значень інтенсивності теплового шуму  $\kappa$ . Суцільні лінії отримані шляхом чисельного розв'язання стохастичних рівнянь (2.28), а штрихована лінія одержана прямим обчисленням відповідно виразу (3.9), що відповідає детерміністичному наближенню ( $\langle \varpi \rangle |_{\kappa=\infty} = \varpi$ ).



Рис. 3.6. Залежність різниці середньої швидкості обертання для заданої температури та середньої швидкості обертання для детерміністичного наближення  $\epsilon(\Omega)$  для різних значень інтенсивності теплового шуму  $\kappa$ . Обрані параметри обчислень відповідають аналогам для Рис. 3.5.



Рис. 3.7. Середнє значення безрозмірної кутової швидкості обертання наночастинки як функція безрозмірної частоти  $\tilde{\Omega}$  для  $h_m = 1$ ,  $\kappa = 5$  та різних значень параметру  $h_{z0}$ .

зовнішнього поля, а z-компонента безрозмірного магнітного моменту задається виразом (3.6).

Оскільки рівняння (2.28) нелінійні, крутний момент від випадкових термічних сил суттєво впливає на осереднені характеристики прецесійного руху наночастинки. Зокрема, завдяки такій дії, середня кутова частота прецесії стає менше частоти зовнішнього магнітного поля, тобто,  $\langle \varpi \rangle < 1$  для усіх скінчених значень  $\kappa$ . Більш того, чисельне моделювання показує, що  $\langle \varpi \rangle$  є монотонною функцією, що зменшується від  $1/\kappa$ , з граничними значеннями  $\langle \varpi \rangle|_{1/\kappa=0} = 1$  та  $\langle \varpi \rangle |_{1/\kappa = \infty} = 0$ . Середня частота обертання <br/>  $\langle \varpi \rangle$  також монотонно зменшується зі збільшенням частоти  $\widetilde{\Omega}$  (див. Рис. 3.7), та  $\langle \varpi \rangle \to 0$  як  $\widetilde{\Omega} \to \infty$  для усіх скінчених к. Важливою особливістю цих залежностей є те, що вони зменшуються повільніше з ростом  $h_{z0}$ . Цей факт свідчить про існування характерної частоти  $\widetilde{\Omega}_0$ , яка розділяє дві якісно різні поведінки  $\langle \varpi \rangle$  як функції  $h_{z0}$ . Мається на увазі, що  $\widetilde{\Omega} < \widetilde{\Omega}_0$  та  $\langle \varpi \rangle$  монотонно спадає зі збільшенням  $h_{z0}$ , та  $\langle \varpi \rangle$ виявляє немонотонну залежність  $h_{z0}$  якщо  $\widetilde{\Omega} > \widetilde{\Omega}_0$ , як показано на Рис. 3.8. Важливо підкреслити, що всі ці варті особливої уваги властивості середньої частоти прецесії наночастинок виникають в результаті теплових флуктуацій на відміну від детерміністичного випадку, коли  $\langle \varpi \rangle = 1$ .



Рис. 3.8. Середнє значення безрозмірної кутової швидкості обертання наночастинки як функція зовнішнього постійного поля  $h_{z0}$  для  $h_m = 1$ ,  $\kappa = 5$  та двох значень частоти  $\widetilde{\Omega}$ . Має місце характерна частота  $\widetilde{\Omega}_0$  яка розділяє монотонний режим ( $\widetilde{\Omega} < \Omega_0$ ) та немонотонний режим ( $\widetilde{\Omega} > \widetilde{\Omega}_0$ ) залежності  $\langle \varpi \rangle$  від  $h_{z0}$ , яка для даних значень параметрів складає  $\widetilde{\Omega}_0 = 0.78$ .

Нарешті, залежність середнього значення безрозмірної намагніченості  $\langle m_z \rangle$  від  $\tilde{\Omega}$  та  $\kappa$  продемонстрована на Рис. 3.9. Як бачимо,  $\langle m_z \rangle$  прямує до значень, передбачених теоретично відповідно до виразу (3.6) зі зростанням  $\kappa$ , та  $\langle m_z \rangle$  практично не залежить від  $\tilde{\Omega}$  для відносно невеликих значень  $\kappa$ . Оскільки ліміт  $\tilde{\Omega} \to \infty$  відповідає відсутності поля, що обертається з виразу (2.16) можна отримати  $\langle m_z \rangle|_{\tilde{\Omega} \to \infty} = 2\pi \int_0^{\pi} \cos \theta P_0(\theta) d\theta = L(\kappa h_z)$ , де  $L(x) = \coth x - 1/x$  – відома функція Ланжевена. Зокрема, для кривих 1, 2 та 3 функція  $L(\kappa h_z)$  приблизно дорівнює 0.778, 0.438 та 0.099, відповідно.

Далі, як можна побачити з Рис. 3.10, аналітичні та чисельні результати добре корелюють для цікавих з практичної точки зору значень інтенсивностей шуму та параметрів зовнішнього поля. Таким чином, для  $\kappa = 5$  та  $h_m = 0.01$ , вираз для потужності (3.29) дає достовірні результати для частот поля до  $\tilde{\Omega} \sim 0.1$ . Вивчення втрат потужності у всьому прийнятному діапазоні параметрів може виконуватися лише чисельно. Як і слід було очікувати, коли відношення магнітної і теплової енергії  $\kappa$  зростає, втрати потужності прямують до граничних значень, які задаються детерміністичним наближенням. З Рис. 3.10 видно, що для малих частот різниця між значеннями втрат потужності зростає нелінійно від  $\kappa$ . Однак, ця різниця зменшується зі зростанням частоти



Рис. 3.9. Частотна залежність середньої намагніченості наночастинки для  $h_{z0} = 0.3$ ,  $h_m = 1$  та різних значень відношення магнітної та теплової енергій  $\kappa$ . Пунктирна крива репрезентує теоретичні результати (3.6) для детерміністичного випадку.



Рис. 3.10. Порівняння аналітичних та чисельних результатів під дією циркулярно-поляризованого поля. Співвідношення між магнітною та тепловою енергією має значення  $\kappa = 5$ , амплітуда поля має значення  $h_m = 0.01$ . Теорія дає більші значення, і різниця збільшується з частотою.



Рис. 3.11. Частотні залежності втрати потужності для різних значень співвідношення між магнітною та тепловою енергіями при дії циркулярнополяризованого поля. Амплітуда поля має значення  $h_m = 0.05$ . Поведінка подібна до випадку дії лінійно поляризованого поля (див. Рис. 3.14), але значення приблизно в два рази більші.

 $\widetilde{\Omega}$  і стає досить незначною вже для  $\widetilde{\Omega} \sim 1$ . На високих частотах значення qпрямують до константи, яка пропорційна до  $h_m$  в широкому діапазоні  $\kappa$ . Порівнюючи Рис. 3.11 та Рис. 3.14 можна зробити висновок, що залежності, отримані для циркулярно та лінійно поляризованих полів, якісно аналогічні. Відповідно до результатів у випадку відсутності шуму (3.20), асимптотичні значення на високих частотах для циркулярно-поляризованого поля приблизно в два рази більше, ніж для лінійно поляризованого поля. Різниця в два рази актуальна практично для всього діапазону частот, що є наслідком наявності термостату і не завжди характерно для випадку відсутності шуму. Інтегровані результати для різних значень  $\kappa$  та  $h_m$  проілюстровані на Рис. 3.12, де всі зазначені тенденції та особливості показані у однаковий спосіб. Як видно з Рис. 3.12а, для малих частот ( $\widetilde{\Omega} = 0.05$  на рисунку) характер залежностей знаходиться в хорошому узгодженні з аналітичним виразом (3.29), де втрати потужності пропорційні  $\kappa^2$  та  $h_m^2$ . На противагу, як випливає з Рис. 3.12b, для великих частот ( $\widetilde{\Omega}=1\,$ на рисунку) залежність від $\,\kappa\,$ стає слабкою, а нелінійне зростання від  $h_m$  залишається.

В якості попереднього підсумку, ми хочемо підкреслити наступне. Теплові коливання призводять до падіння втрат потужності, але за характером зале-



Рис. 3.12. Залежність втрат потужності від частоти поля та співвідношення магнітної та теплової енергій при дії циркулярно-поляризованого поля. Частина а) демонструє сильне нелінійне зниження втрат потужності за обома параметрами, у випадку малої частоти (значення частоти поля обрано як  $\tilde{\Omega} = 0.05$ ). Частина б) демонструє слабку залежність втрат потужності від співвідношення між магнітною та тепловою енергіями, у випадку великих частот (значення частоти поля обрано як  $\tilde{\Omega} = 1$ )
жностей  $q(\tilde{\Omega})$  залишаються подібними отриманим у детерміністичному наближенні. Різниця викликана тепловим шумом зменшується з частотою поля. Результати, подані для циркулярно-поляризого поля якісно корелюють з результатами, отриманими в роботах [94,95], в той час як для лінійно поляризованого поля ми грунтувались на обчисленнях, поданих у роботі [97]. Але ми провели наше дослідження всіх цих випадків в єдиній і методологічно однозначній манері, аналітична складова якої заснована на рівнянні Фоккера-Планка (2.20) та визначенні втрат потужності у вигляді (2.29). У свою чергу, ефективна форма рівняння Ланжевена (2.28) використовувалася для чисельного моделювання, що в результаті дало нам можливість простежити глибоке розуміння ролі теплових флуктуацій в поглинанні змінного поля наночастинкою, в наближенні вмороженого магнітного моменту.

#### 3.2.2. Стохастичне наближення: дія лінійно-поляризованого поля

Далі, розглянемо випадок, коли зовнішнє поле коливається уздовж вісі z, див. рівняння (2.3b). З міркуваннь симетрії, ми припускаємо, що щільність ймовірності P залежить тільки від полярного кута  $\theta$  і не залежить від азимутального кута  $\phi$ . Потім, наслідуючи [97], подаємо щільність ймовірності як P у формі  $P = P(\theta, \tilde{t}) = \sin \theta f(\tilde{t})$  що, в свою чергу, дозволяє спростити рівняння Фоккера-Планка (2.20) до вигляду

$$\frac{df}{d\tilde{t}} = \frac{1}{\kappa} \left[ \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial\theta} \left( \sin\theta \frac{\partial f}{\partial\theta} + f\kappa h_m \sin^2\theta \cos(\tilde{\Omega}\tilde{t}) \right) \right].$$
(3.31)

Для спрощення подальших розрахунків використаємо позначення  $\cos \theta = x$  та перепишемо вираз (3.31)

$$\frac{df}{d\tilde{t}} = \frac{1}{\kappa} \frac{\partial}{\partial x} \left[ (1 - x^2) \frac{\partial f}{\partial x} - \kappa h_m \cot(\widetilde{\Omega}\tilde{t}) (1 - x^2) f \right].$$
(3.32)

Ми підкреслюємо, що рівняння (3.32) повністю збігається з відповідним виразом в [97]. Його розв'язок можна тримати шляхом розкладання на поліноми Лежандра та гармоніки

$$f = \frac{1}{2} + \sum_{\ell=0}^{\infty} \left[ \sum_{n=0}^{\infty} A_{\ell n} \cos(n \widetilde{\Omega} \widetilde{t}) + \sum_{n=0}^{\infty} B_{\ell n} \sin(n \widetilde{\Omega} \widetilde{t}) \right] \mathcal{P}_{\ell}(x),$$
(3.33)

де  $\mathcal{P}_{\ell}(x)$  – поліноми Лежандра, n,  $\ell$  – цілі числа. Пряма підстановка рівняння (3.33) в (3.32) дозволяє нам вивести алгебраїчну систему рівнянь, розв'язком якої є невідомі коефіцієнти  $A_{\ell n}$ ,  $B_{\ell n}$ 

$$-n\widetilde{\Omega}A_{\ell n} = \frac{1}{\kappa} \bigg[ -\ell(\ell+1)B_{\ell n} + \frac{\kappa h_m}{2} \bigg( \frac{\ell(\ell+1)}{2\ell-1} \big( B_{\ell-1,n-1} + B_{\ell-1,n+1} \big) - \frac{\ell(\ell+1)}{2\ell+3} \big( B_{\ell+1,n-1} + B_{\ell+1,n+1} \big) \bigg) \bigg],$$
(3.34)

$$n\widetilde{\Omega}B_{\ell n} = \frac{1}{\kappa} \bigg[ -\ell(\ell+1)A_{\ell n} + \frac{\kappa h_m}{2} \bigg( \frac{\ell(\ell+1)}{2\ell-1} \big( (1+\delta_{n\ell})A_{\ell-1,n-1} + A_{\ell-1,n+1} \big) \\ - \frac{\ell(\ell+1)}{2\ell+3} \big( (1+\delta_{n\ell})A_{\ell+1,n-1} + A_{\ell+1,n+1} \big) \bigg) \bigg],$$
(3.35)

де $~n\geq 1~$ або $~\ell\geq 1$ . Інші випадки визначаються наступним чином

$$A_{\ell 0} = \frac{\kappa h_m}{2} \left[ \frac{1}{2\ell - 1} A_{\ell - 1, 1} - \frac{1}{2\ell + 3} A_{\ell + 1, 1} \right]$$
(3.36)



Рис. 3.13. Чисельно отримані залежності коефіцієнта  $B_{11}$  в (3.35) від параметра  $\kappa$ , який представляє собою відношення між магнітною і тепловою енергією. Відзначається насичений характер і складна частотна поведінка.

для  $\ell \ge 1$ ,  $A_{00} = 0.5$ ,  $A_{0n} = 0$ ,  $B_{\ell 0} = 0$ ,  $B_{0n} = 0$ , i, нарешті,  $A_{\ell n} = 0$ ,  $B_{\ell n} = 0$ , коли  $\ell + n$  непарне.

Втрати потужності  $\tilde{\Omega}$  у випадку дії лінійно поляризованого поля легко отимати прямою підстановкою виразу (3.33) (з урахуванням, що  $P = P(\theta, \tilde{t}) =$  $\sin \theta f(\tilde{t})$ ) до означення потужностей втрат у вигляді (2.34). Після виконання всіх процедур інтегрування, остаточний вираз має досить просту форму

$$q = \frac{1}{3} h_m \widetilde{\Omega} B_{11}, \qquad (3.37)$$

що корелює з детерміністичним аналогом. Вплив шуму прихований в параметрі  $B_{11}$ , який можна проаналізувати лише чисельно. Як видно з Рис. 3.13, залежність  $B_{11}(\kappa)$ , яка була отримана шляхом чисельного аналізу виразів (3.34)-(3.36), демонструє насичений характер на великих частотах. Для малих значень параметру  $\kappa$ , значення  $B_{11}$  швидко зростає на великих частотах, тоді як для великих  $\kappa$  ці тенденції змінюються на протилежні. Цей факт говорить про перевагу використання високочастотних полів при високих температурах. Нарешті,  $B_{11}(\kappa)$  зростає з амплітудою поля, особливо для великих  $\kappa$ . Таким чином, чутливість  $B_{11}$  до  $\kappa$  зростає з амплітудою та частотою поля  $h_m$  і  $\tilde{\Omega}$ .



Рис. 3.14. Частотні залежності втрат потужності при різних значеннях відношення між магнітною та тепловою енергіями під час дії лінійно поляризованого поля. Амплітуди поля має значення  $h_m = 0.05$ . Чисельні та аналітичні прогнози добре узгоджуються між собою. Слід відзначити насичений характер поведінки і відповідність з результатами у випадку відсутності шуму.

Для підтвердження аналітичних висновків була проведена серія циклів симуляції на основі числового інтегрування (2.28). Як ми можемо побачити з Рис. 3.14, аналітичні та числові результати добре узгоджуються в широкому діапазоні параметрів. Залежності якісно схожі з аналогами для детерміністичного наближення, а кількісна різниця зменшується з  $\kappa$ . Зрештою, ця різниця більш виражена для малих частот і зникає для великих  $\tilde{\Omega}$ .

### 3.3. Висновки до розділу 3

У детерміністичному наближенні отримано низку аналітичних результатів для випадку дії змінного поля на наночастинку з вмороженим магнітним моментом. Проаналізовано випадки різних типів поляризації та діапазонів амплітуди і частоти поля. Отримані залежності потужності втрат мають насичений характер і встановлюють опорні значення для реальних, практично значимих випадків, що дозволятиме дати оцінку діапазону швидкостей нагрівання середовища під час магнітної гіпертермії. Результати детерміністичного наближення дозволяють зрозуміти характер дії термостату та дипольної взаємодії для подальшого уточнення характеристик відгуку ферорідин. Було показано, що теплові коливання нелінійно знижують втрати потужності на невеликих частотах. Так, для циркулярно-поляризованого зовнішнього поля це зменшення реалізується як  $\kappa^2$  ( $\kappa$  – відношення магнітної та теплової енергій), за умов  $\kappa h_m \ll 1$ ,  $\kappa \tilde{\Omega} \ll 1$ . У той же час, для досить великих частот ( $\tilde{\Omega} \sim 1$ ), різниця між значеннями втрат потужності при різній інтенсивності шуму, яка визначається  $\kappa$ , стає менш вираженою. І нарешті, коли  $\tilde{\Omega} \ll 1$ , результати майже не відрізняються від детерміністичного наближення в широкому діапазоні  $\kappa$ . Така поведінка повинна враховуватися для підвищення ефективності методу магнітної гіпертермії.

З проведеного детального аналізу видно, що значення втрат потужності для циркулярно-поляризованого поля приблизно в два рази перевищують значення для лінійно поляризованого у всьому діапазоні частот. Це очевидно для квазірівноважного наближення, описаного в [68] і випливає з детерміністичного наближення для високих частот. Але це досить несподівано для низькочастотної поведінки в динамічному наближенні, де ситуація може істотно відрізнятися. Цей факт говорить про те, що теплові коливання якісно змінюють поведінку частинок.

## 4. АНСАМБЛЬ НАНОЧАСТИНОК З ВМОРОЖЕНИМ МОМЕНТОМ: РЕЗУЛЬТАТИ МОДЕЛЮВАННЯ З УРАХУВАННЯМ ВЗАЄМОДІЇ

## 4.1. Рівноважні характеристики ансамблю та вплив граничних умов

Для здійснення перевірки розроблений чисельний інструмент спочатку було застосовано до моделювання поведінки фероріднини у квазістатичному полі. Для цього було взято ансамбль з  $N = 10^4$  частинок магхеміта ( $\gamma - \text{Fe}_2\text{O}_3$ ) з такими параметрами  $M = 3.1 \cdot 10^5$  А/м,  $\rho = 5000$  кг/м<sup>3</sup>, R = 10 нм. Вважалось, що частинки завислі у звичайній воді ( $\eta = 0.89 \cdot 10^{-3}$  П·с). Вважалося, що ансамбль знаходиться в циліндричній посудині, висота якої у п'ять разів перевищує діаметр, якщо спеціально не обумовлено інше. Вісь *ог* декартової системи координат направлена вздовж висоти посудини. Параметри взаємодії у виразі (2.39) приймалися відповідно  $\sigma = 2.1$ ,  $\varepsilon = 0.005$ , температура приймалася такою, що дорівнює T = 300 К, якщо спеціально не обумовлено інше. Рівноважний стан для заданих параметрів знаходився протягом  $3 \cdot 10^4$  ітерацій, при цьому осереднені характеристики розраховувалися за останніми  $2 \cdot 10^4$ ітераціями [2].

Інтенсивність дипольного взаємодії залежить від середньої відстані між частинками, яка тим менше, чим більший об'ємний вміст частинок

$$c = \frac{4\pi R^3 N}{3V_f} \cdot 100\%,$$
(4.1)

де  $V_f$  – об'єм рідини. За умови, що  $c \to 0$ , середнє значення наведеної намагніченості  $\langle u_i \rangle$  вздовж *i*-ої координатної вісі описується функцією Ланжевена

$$\langle u_i \rangle = \coth \alpha - 1/\kappa, \kappa = M H_i^{ext}/k_B T$$
 (4.2)

де  $H_i^{ext}$  – зовнішнє поле вздовж *i*-ої вісі. На Рис. 4.1а показані залежності безрозмірної намагніченості від зовнішнього поля для різних об'ємних концентрацій частинок. Як видно з рисунка, результат взаємодії, як правило, має характер збільшення намагніченості в порівнянні з випадком без взаємодії. Це пов'язано з тим, що дипольне поле частинок, магнітні моменти яких зорієнтовані переважно вздовж зовнішнього поля, збігається з останнім у напрямку, і у такий спосіб посилює його. У результаті у рівноважному стані для даних умов моделювання частинки утворюють лінійні ланцюжки (див. Рис. 4.1а). Однак, зі зростанням *с* для не дуже великих зовнішніх полів може позначатися антиферомагнітний характер дипольної взаємодії, за якої результуючий напрям розташованих поруч ланцюжків може бути протилежним. Крім того, велика концентрація частинок може обумовлювати утворення замкнутих кільцеподібних кластерів (див. Рис. 4.1б). Усе це призводить до зменшення намагніченості ансамблю. Тому, з ростом концентрації намагніченість ансамблю зростає повільніше, що виражається в меншій крутизні залежності диференціальної магнітної сприйнятливості ансамблю

$$\chi_z = \frac{\Delta \langle u_z \rangle}{\Delta h_z^{ext}},\tag{4.3}$$

див. Рис. 4.16. Слід зазначити, що описаний механізм може призводити до того, що розраховане значення безрозмірної намагніченості може бути меншим, ніж передбачене виразом (4.2).

У разі, коли теплова енергія не перевищує магнітостатичну енергію, обумовлену дипольною взаємодією, роль теплових ефектів незначна. Кількісним критерієм, що це характеризує, є відношення енергії взаємодії двох поруч розташованих частинок до теплової

$$\Lambda = \frac{m^2}{16\pi R^3 k_B T} \tag{4.4}$$

Відомо, [43], коли виконується умова Λ ≪ 1, частинки зазнають броунівського руху, в іншому випадку, вони утворюють кластери, які визначають структуру ферорідини. Послуговуючись виразом (4.4), не важко показати, що для



Рис. 4.1. Вплив об'ємної частки наночастинок в ферорідині на її намагніченість (а) та сприйнятливість (б)



Рис. 4.2. Структури частинок в ферорідині при c = 1% (a) і c = 5% (б)

використовуваних параметрів моделювання в діапазоні температур 200-400 К, параметр  $\Lambda$  набуває значення 1.91-0.955. Тому, відмінність кривих намагнічування для цих температур спостерігаються лише для малих значень зовнішнього поля (див. Рис. 4.3а). Оскільки зі збільшенням температури ускладнюється об'єднання частинок у кластери, відгук на зовнішнє поле стає більш вираженим, що призводить до зростання сприйнятливості з температурою (див. Рис. 4.36). Для великих полів, коли безрозмірна намагніченість прямує до одиниці, теплові флуктуації намагаються зруйнувати впорядкування у ансамблі. Це обумовлює незначне зменшення намагніченості з ростом температури, коли  $\langle u_z \rangle \approx 1$  (див. Рис. 4.3а).

Особливість дипольної взаємодії полягає в тому, що вона призводить до взаємного притягання між частинками. У той же час, за рахунок спеціальних покриттів частинок відбувається відштовхування, яке моделюється за допомогою потенціалу Леннарда-Джонса (2.39b). Одним з основних феноменологічних параметрів в зазначеному потенціалі, є відстань  $\sigma$ , на якій сила притяжіння компенсується силою відштовхування. Зростання цього параметра призводить до зменшення ролі дипольної взаємодії, оскільки збільшується середня відстань між частинками і утворення стабільних кластерів ускладнюється. Як наслідок, це призводить до зростання сприйнятливості (див. Рис. 4.46), як і в разі зростання температури. Для досить великих зовнішніх полів, коли  $\langle u_z \rangle \approx 1$ , ди-



Рис. 4.3. Вплив температури термостата на намагніченість (a) і сприйнятливість (б) ферорідини, c=5%

польне поле підсилює зовнішнє, тому виконується умова  $\langle u_z(\sigma_1) \rangle > \langle u_z(\sigma_2) \rangle$ , якщо  $\sigma_1 > \sigma_2$  (див. Рис. 4.4а).

За рахунок наявності внутрішньої структури, ферорідина може демонструвати залежність властивостей від форми посудини, а також анізотропію властивостей, обумовлену форм-фактором. Якщо, не змінюючи загального об'єму посудини і кількості частинок, змінювати співвідношення між ортогональними лінійними розмірами, в системі будуть спостерігатися дві взаємовиключні тенденції. З одного боку, збільшення одного лінійного розміру буде сприяти утворенню ланцюжків вздовж цього напрямку. В результаті безрозмірна намагніченість (див. Рис. 4.5а), збільшується з ростом відношення «висота: діаметр» (l:d). При цьому сприйнятливість (див. Рис. 4.5б) з ростом l:d демонструє сильнішу залежність від зовнішнього поля з ростом величини  $\chi_z$  для малих зовнішніх полів і, навпаки, більш слабку для великих. Однак, внаслідок зменшення середньої відстані між ланцюжківи, що перешкоджає подальшому збільшенню відмінності залежностей ( $u_z(h_z^{ext})$ ) і ( $\chi_z(h_z^{ext})$ ) з ростом відношення l:d.

За рахунок того, що наночастинкам енергетично вигідно утворювати ланцюжки саме вздовж найбільшого лінійного розміру, буде спостерігатися анізотропія його магнітних властивостей. Якщо зовнішнє поле прикладається уздовж ланцюжка, то за рахунок спрямованого уздовж нього дипольного поля впорядкування магнітних моментів відбувається досить інтенсивно, про що свідчить швидке зростання кривої намагнічування  $\langle u_z(h_z^{ext}) \rangle$  (див. Рис. 4.5а). У той же час, ступінь відгуку уздовж ортогонального напрямку буде значно нижчою, що виражається більш пологою кривою намагнічування  $\langle u_y(h_y^{ext}) \rangle$ , так і більш слабкою залежністю сприйнятливості від зовнішнього поля (див. Рис. 4.66).

Інший прояв анізотропії властивостей полягає в розбіжності проекцій намагніченості на взаємно перпендикулярні координатні вісі під час дії вздовж них однакових постійних полів. Якщо уздовж меншої сторони посудини докласти певне зовнішнє поле ( $h_y^{ext} = 0.3$  на рисунку 4.7), а поле уздовж більшої



Рис. 4.4. Вплив параметру <br/>  $\sigma$ в потенціалі Леннарда-Джонса (2.39b) на намагніченість (a) та сприйнятливість (б) фер<br/>орідини, c=5%



Рис. 4.5. Вплив форм-фактора на намагніченість (a) і сприйнятливість (б) ферорідини,  $c\,=\,5\%$ 



Рис. 4.6. Анізотропія властивостей ферорідини в витягнутій посудині: намагніченість (а) і сприйнятливість (б) ферорідини, l: d = 1:5, c = 5%

сторони ( $h_z^{ext}$ ) поступово змінювати, проекція намагніченості  $\langle u_y \rangle$  буде зростати з більшою швидкістю, ніж зменшуватиметься проекція  $\langle u_z \rangle$  (див. Рис. 4.76). У результаті, коли обидві проекції поля вирівняються ( $h_y^{ext} = h_z^{ext} = 0.3$ ), буде виконуватися умова  $\langle u_y \rangle < \langle u_z \rangle$ .

### 4.2. Вплив взаємодії між частинками на потужність втрат

З попереднього підрозділу очевидно, що взаємодія між частинками може істотно впливати на реакцію на зовнішнє поле, і урахування цієї взаємодії є важливим з огляду на практичні застосування феррорідин. Навіть для порівняно невеликих значень об'єміної концентрації частинок (наприклад, 1%), внаслідок відштовхування, викликаного поверхнево-активним покриттям кожної частинки і далекодіючої дипольної взаємодії між частинками, поведінка кожної з них буде відрізнятись від результатів наближення однієї частинки, наведеного вище. Дипольна взаємодія намагається об'єднати частинки у кластери. Такі структури є надзвичайно небажаними для гіпертермії з точки зору подальшої метаболізації та виведення наночастинок після сеансу терапії. Щоб запобігти цій кластеризації, частинки покриті поверхнево-активною речовиною, що забезпечує відштовхування. Конкуренція між вищезгаданими взаємодіями може змінити питомі втрати потужності кожної частинки в широкому діапазоні, що і є предметом розгляду цього розділу.

Взаємодія між частинками, за великим рахунком, збільшує магнітну енергію, і у цього факту є два наслідки. По-перше, регулярна компонента руху стає сильнішою через взаємодію, а стохастичний компонент, навпаки, пригнічується. На перший погляд, таке стримування може призвести до підвищення втрат потужності. По-друге, взаємодія фіксує магнітні моменти частинок, а відгук на зовнішнє поле стає більш слабким. Ця тенденція призводить, навпаки, до зменшення втрат потужності, що спостерігалося в останніх експериментах [72–77,77–79]. Тим не менше, згадані експерименти не описують всі можливі



Рис. 4.7. Анізотропія магнітних властивостей за взаємно перпендикулярної дії зовнішніх полів: намагніченість (а) і сприйнятливість (б) ферорідини,  $l:d=1:5\,,~\phi=5\%$ 

ситуації та говорять про необхідність майбутніх експериментальних та чисельних досліджень.

Як зазначено вище, взаємодія призводить до утворення кластерів, коли сильні дипольні поля утримують кожну частинку, що перешкоджає подальшим поступальним і обертальним рухам. У той же час, кластери є джерелом декількох явищ, які суттєво змінюють значення втрат потужності. По-перше, кожна частинка намагається зменшити свою енергію і перейти до рівноважного або квазірівноважного стану, викликаного взаємодією. Зокрема, такі стани утворюються дипольним полем, яке намагається впорядкувати магнітні моменти частинок уздовж визначених напрямків. Через теплові коливання магнітний момент разом з частинкою може здійснювати перехід або перемикання між цими станами. Такі перемикання змінюють магнітну конфігурацію у кластерах і, навіть, призводять до їх часткових руйнувань. За певних обставин це може призвести до збільшення втрат потужності. По-друге, досить великі коливання можуть повністю дизасемблювати кластери, після чого відгук наночастинок на зовнішнє поле покращиться. Це також здатне збільшити втрати потужності, і ми інтерпретуємо це як конструктивну роль теплового шуму. Всі вищезгадані явища, включаючи вплив параметрів системи на їх умови виникнення були досліджені ретельно та детально. Найбільш цікавим є вплив об'ємної концентрації частинок, інтенсивності шуму та характеристика поверхнево-активних речовин на поведінку ансамбля, зокрема на потужність втрат.

Щоб пояснити згадані явища, розглянемо механізми формування кластерів детально. З позиції мінімальної магнітостатичної енергії, частинки повинні бути якнайближче одна до одної. Крім того, магнітний момент кожної частинки повинен бути спрямований вздовж результуючого дипольного поля, яке генерується іншими частинками. Оскільки магнітні силові лінії є замкнутими кривими, відбуваються дві тенденції. По-перше, магнітні моменти частинок намагаються бути вирівняні вздовж одного напрямку, і це призводить до формування ланцюжкового кластера. По-друге, фрагменти ланцюжка, як правило, розташовуються антипаралельно і притягують один одного, утворюючи анти-



Рис. 4.8. Результати моделювання ансамблю: частотні залежності втрат потужності для різних значень об'ємної концентрації частинок при дії циркулярнополяризованого поля. Амплітуда поля має значення  $h_m = 0.05$ , співвідношення між магнітною та тепловою енергіями має значення  $\kappa = 10$ , значення глибини потенціального бар'єру обрано  $\varepsilon = 0.04$ , безрозмірна рівноважна відстань між двома частинками має значення  $\sigma = 2.25$ . Частинки об'єднані в ланцюжковоподібні структури

ферромагнітну структуру. Для запобігання такої агломерації кожна частинка покрита спеціальною поверхнево-активною речовиною, що забезпечує стеричне відштовхування. Змагання між притяганням диполя та стеричним відштовхуванням можуть призвести до зовсім різних результатів. Потрібно підкреслити, що оскільки величина намагніченості є важливою для методу гіпертермії, доцільно синтезувати частинки з більшою намагніченістю, наскільки це можливо. Як наслідок, інтенсивність дипольної взаємодії буде збільшуватися, а кластери ставатимуть щільніше. Тому актуальність врахування взаємодії стає більшою.

Різні параметри системи впливають на процес формування кластерів порізному, і цей вплив може бути неоднозначним. Як правило, збільшення об'ємної концентрації частинок призводить до їх агломерації, що, в свою чергу, призводить до зменшення втрат потужності (див. Рис. 4.8). Це можна пояснювати різними типами та зміною конфігурацій кластерів зі змінами концентрації. Коли об'ємна концентрація частинок невелика, утворюються ланцюжкові структури. Частинки в таких структурах слабко взаємодіють, тому вони більш

чутливі до зовнішнього поля. Для більшої об'ємної концентрації частинок короткі ланцюжкові фрагменти приєднуються один до одного, створюючи більш щільні структури з більш сильною взаємодією. І ці агреговані структури мають слабку реакцію на зовнішнє поле. Але є деякі винятки з цих тенденцій. По-перше, коли інтенсивність шуму досить мала, роль концентрації частинок може бути незначною. Це відбувається тому, що сформовані скупчення для різних об'ємних концентрацій мають схожу структуру і залишаються стабільними. По-друге, втрата потужності може збільшуватися з об'ємною концентрацією, як видно з Рис. 4.9 з наступних причин. Коли взаємодія між частинками в кластерах сильна, для перемагнічування всього кластера потрібне сильне поле, і, як наслідок, петля гістерезису розширюється. Це підтверджується тим, що крива для 5% на Рис. 4.9 розміщена вище за криву 3%. Цей ефект зникає на більших частотах, коли кластери не встигають здійснювати повний оберт протягом періоду поля. Тут сильна взаємодія пригнічує реакцію кожної частинки, і втрати потужності, навпаки, стають меншими порівняно з випадком менших об'ємних концентрацій. Неоднозначний характер залежності втрат потужності від концентрації частинок має експериментальне підтвердження у дослідженнях питомої швидкості абсорбції наночастинок оксиду заліза, зважених у різних в'язких органічних розчинах [179] (див. Рис. 4).

Теплові коливання порушують впорядкування у кластерах зі зростанням температури, і це може по-різному вплинути на відгук феррорідини до зовнішнього поля. Дуже цікавий ефект відбувається за певних обставин, коли магнітна енергія частинки більша, ніж теплова, але не настільки велика, щоб виключити істотні коливання протягом періоду поля. У цьому випадку кожна частинка в кластері знаходиться в квазірівноважному стані, що забезпечується результуючим дипольним полем. Магнітний момент частинки часто коливається біля одного з цих станів. Через рідкісні, але сильні коливання частинка може переходити з одного стану в інший. Таке явище схоже на релаксацію магнітного моменту у фіксованій одноосьовій частинці, що було описано в [34] або на перемикання викликане полем тієї ж частинки, розглянуте в [167]. Перехі-



Рис. 4.9. Результати моделювання ансамблю: частотні залежності втрат потужності для різних значень об'ємної концентрації частинок при дії циркулярнополяризованого поля. Амплітуда поля має значення  $h_m = 0.05$ , співвідношення між магнітною та тепловою енергіями має значення  $\kappa = 25$ , глибина потенціального бар'єру має значення  $\varepsilon = 0.04$ , безрозмірна рівноважна відстань між двома частинками має значення  $\sigma = 2.25$ . Частинки об'єднуються в щільні кластери, що складаються з фрагментів ланцюжків

дний процес протікає досить швидко, але під час цього кожна частинка знаходиться в дуже збудженому стані, який характеризується високою енергією у зовнішньому полі. Як правило, це призводить до збільшення втрат потужності, особливо для високих частот, коли час одного переходу стає порівняним з періодом поля. Такий приріст розсіювання енергії вимагає ряду умов, оскільки багато факторів впливають на співвідношення теплової та детерміністичної магнітної енергій, а саме, інтенсивності шуму, параметрів поверхнево-активних речовин та типів кластерів. На Рис. 4.10, збільшення втрат потужності через теплові коливання відображається в поведінці кривої для  $\kappa = 25$ . Як видно, криві для  $\kappa = 25$  та  $\kappa = 40$  збігаються для малих частот. Але в той час як частота збільшується, різниця між кривими для  $\kappa = 25$  та  $\kappa = 40$  стає більшою. Слід очікувати, для частот більше, ніж  $\tilde{\Omega} = 5$  значення втрат потужності для  $\kappa = 25$  будуть більшими, ніж для  $\kappa = 10$ . У цьому сенсі цей ефект може бути більш продуктивним з точки зору збільшення потужності втрат, ніж розпад кластеру, описаний нижче.



Рис. 4.10. Результати моделювання ансамблю: частотні залежності втрат потужності для різних значень відношення магнітної та теплової енергій при дії циркулярно-поляризованого поля. Амплітуда поля має значення  $h_m = 0.05$ , об'ємна концентрація частинок має значення 1%, значення глибини потенціальйного бар'єру обрано  $\varepsilon = 0.04$ , безрозмірна рівноважна відстань між двома частинками має значення  $\sigma = 2.25$ . Походження незвичайної поведінки кривої для  $\kappa = 25$  полягає в перемиканнях частинок між квазірівноважними станами, які виникають внаслідок дії локальних дипольних полів.

Незважаючи на те, що шум пригнічує відгук кожної частинки на зовнішнє поле, для взаємодіючого ансамблю його дія, як вже демонструвалось вище, може призвести до зовсім різних результатів. Частинки в щільних скупченнях міцно зв'язані і слабко піддаються дії зовнішнього поля. Але якщо теплова енергія порівнянна з магнітною, то теплові коливання роблять частинки вільними, що повністю запобігає утворенню кластера. Таким чином, теплові коливання напряму збільшують реакцію частинок на зовнішнє періодичне поле і, відповідно, енергію, поглинену від цього поля. Ми схильні тлумачити це як конструктивну роль шуму. Результати набору серій запусків чисельного моделювання, що підтверджують це явище, зображені на Рис. 4.11. По-перше, для великої інтенсивності шуму ( $\kappa = 10$ ) агрегація частинок не відбувається, і це явище дуже виражено. По-друге, для меншої інтенсивності від інших параметрів. Як видно, на низьких частотах крива для  $\kappa = 25$  майже збігається з кривою для  $\kappa = 40$ , і обидві вони розташовані далеко вище кривої для  $\kappa = 10$ . В



Рис. 4.11. Результати моделювання ансамблю: частотні залежності втрат потужності для різних значень відношення магнітної та теплової енергій при дії циркулярно-поляризованого поля. Амплітуда поля має значення  $h_m = 0.05$ , об'ємна концентрація частинок має значення 3%, значення глибини потенціального бар'єру обрано  $\varepsilon = 0.02$ , безрозмірна рівноважна відстань між двома частинками має значення  $\sigma = 2.25$ . Позиції кривих показують, що кластери руйнуються повністю при збільшенні інтенсивності шуму.

обох випадках утворюються схожі кластери, і вони не повністю руйнуються тепловими шумами. Але для високих частот, коли індуковані полем коливання частинок сприяють руйнуванню кластерів, різниця між згаданими кривими збільшується.

Узагальнюючи, варто зазначити, що взаємодія між частинками, а також тепловий шум пригнічує реакцію частинок на зовнішнє поле. У той же час, обидва ці фактори можуть конкурувати один з одним, а результуюча втрата потужності в періодичному зовнішньому полі може широко варіюватися. Вирішальну роль тут відіграє утворення кластерів внаслідок дипольної взаємодії з подальшими перетвореннями кластерів та руйнуванням завдяки тепловим флуктуаціям та дії зовнішнього періодичного поля. Головний практичний результат полягає в тому, що підвищення температури *може сприяти* поглинанню енергії. І тому існує дві причини: перемикання частинок у кластері внаслідок коливань, тимчасово руйнуючи магнітний порядок, і повне розкладання кластерів шумом, що збільшує реакцію частинок на зовнішнє поле.

### 4.3. Висновки до розділу 4

У розділі було показано, що у проблемі нагрівання фероріднини змінним полем ключова роль належить структурі рідини, яка, в свою чергу, формується за рахунок дипольної взаємодії. Показано, що процес кластеризації, що має своїм результатом ту чи іншу структуру досліджуваного середовища, залежить від ряду факторів, таких як об'ємний вміст частинок, характеристики додаткових сил відштовхування, які забезпечуються за рахунок покриття наночастинок сурфактантами, температури, а, також форм-фактора посудини.

Встановлено, що за не дуже великого об'ємного вмісту частинок вони шикуються в ланцюжки і дипольне поле підсилює зовнішнє, що призводить до зростання сприйнятливості в порівнянні з випадком відсутності взаємодії. З подальшим зростанням вмісту частинок за рахунок можливості утворення кільцеподібних кластерів або антиферомагнітного упорядкування ланцюжків, які розташовані поруч, починає переважати тенденція до зменшення ступеня відгуку середовища на зовнішнє поле, і залежність сприйнятливості від зовнішнього поля стає слабшою. Описані тенденції можуть бути істотно посилені, якщо помістити ансамбль у вузьку посудину, що дозволяє говорити про анізотропію, зумовлену форм-фактором посудини.

Якщо намагніченість системи не виходить на насичений рівень, сприйнятливість демонструє зростання з температурою, оскільки теплові флуктуації перешкоджають кластеризації, що знижує ступінь відгуку ансамблю на зовнішнє поле. Якщо ж намагніченість близька до насиченої, за рахунок теплових флуктуацій сприйнятливість навпаки, зменшується.

Встановлено, що взаємодія між частинками сильно впливає на сприйнятливість ансамблю до зовнішніх періодичних полів. Через утворення кластерів кожна частинка знаходиться під дією досить сильного результуючого дипольного поля, що ускладнює її реакцію на зовнішнє поле. Це призводить до значного зниження втрат потужності, що узгоджується з експериментами. За рахунок різних типів кластерів відгук ферорідини може істоно змінюватись за невеликих змін параметрів поля. Ці ефекти особливо актуальні для низьких частот, коли кластери повністю переорієнтуються протягом періоду поля. Це призводить до сильної різниці між значеннями *q* в порівнянні з результатами випадку однієї частинки. Ця різниця зменшується з частотою поля, і для високих частот потужність втрат прямує до результатів детерміністичного наближення.

Проте, взаємодія між частинками та тепловий шум є конкуруючими факторами. Встановлено, що в системі можлива конструктивна роль шуму. Перший факт останнього має місце, коли інтенсивність шуму велика: руйнуються кластери, що призводить до збільшення q в наслідок кращої реакції частинок на зовнішнє поле. І за певних інших умов більша інтенсивність шуму відповідає більшим втратам потужності. Другий факт має місце, коли магнітна енергія є порівняною з тепловою. Тут коливання частково розмивають порядок частинок у кластері, що веде до значного збільшення q для високих частот поля. Це пояснюється поодинокими інвертуваннями частинок в кластері між квазірівноважними станами, утвореними дипольними полями. З допомогою таких механізмів можна істотно підвищити швидкість нагрівання у процесі гіпертермії.

# 5. СПРЯМОВАНИЙ ТРАНСПОРТ ПЕРІОДИЧНО ЗБУДЖЕНИХ ФЕРОМАГНІТНИХ НАНОЧАСТИНОК, ІНДУКОВАНИЙ СИЛОЮ МАГНУСА В РІДКІЙ МАТРИЦІ

### 5.1. Вступ до розділу 5

Ефект Магнуса – це відхилення траєкторії тіла, що рухається в середовищі з обертанням, від траєкторії цього ж тіла, що рухається без обертання. Цей ефект відіграє важливу роль, наприклад, у спорті [180, 181], аеронавтиці [182] та формуванні планет [183, 184]. Зазначимо, що ефект Магнуса може існувати і у випадку локалізованих утворень середовища, таких як вихори у магнетиках, надпровідниках і надплинних рідинах, але його природа в кожному такому випадку своя (див., наприклад, [185, 186]).

Силу, яка викликає зміну траєкторії тіла що рухається з обертанням, зазвичай називають силою Магнуса. Оскільки ця сила залежить від багатьох факторів, таких як розмір тіла, його форми та шорсткості поверхні, від характеристик його поступального та обертального рухів, динаміки навколишнього середовища тощо, її розрахунок не є простою задачею. Більше того, за певних умов (наприклад при русі в розрідженому газі сфери, що обертається [187,188]), може існувати зворотний, а не класичний, ефект Магнуса, в якому напрямок сили Магнуса є протилежним до того, що визначається принципом Бернуллі. Однак у випадку гладких сферичних частинок, чиї поступальні та обертальні рухи характеризуються малими числами Рейнольдса, ефект Магнуса є класичним, а силу Магнуса можна визначити аналітично [189]. Хоч загалом ці умови є досить жорсткими, їх можна легко реалізувати для малих частинок, завислих у рідині.

Як правило, особливості трансляційної динаміки феромагнітних частинок під дією гармонічної сили та коливального магнітного поля раніше не викликали великого інтересу. Це пояснюється тим, що через відносно невелику силу Магнуса, зміщення частинок, спричинене цією силою протягом періоду поля, також незначне. Однак, якщо зовнішня сила і магнітне поле належним чином синхронізовані, сила Магнуса може індукувати спрямований транспорт (дрейф) частинок. Цей ефект, який був передбачений і докладно вивчений в роботах [5, 190–192], має особливий інтерес для сепарації частинок, оскільки величину швидкості дрейфу та напрямок дрейфу можна керувати зовнішніми параметрами.

### 5.2. Феномен транспорту: основні рівняння та аналітичні результати

Розвинута методологія окрім результатів детально описаних у попередніх розділах дозволяє ефективно дослідити вплив температурних ефектів на дрейф, зумовлений силою Магнуса. Найперше, треба зазначити, що дана сила виникає за умови сумісної дії зовнішнього поля спеціального типу, яке здійснює коливання в площині xy з частотою  $\Omega$ , а також періодичної сили, частота якої також дорівнює  $\Omega$ . Для зручності тут введемо безрозмірний час  $\tilde{t}$  дещо іншим чином ніж це було зроблено вище:  $\tilde{t} = \Omega t/2\pi$ . Таким чином  $\tilde{t}$  буде вимірюватися у частинах періоду зовнішньої дії, а сама зовнішня дія у безрозмірному вигляді буде подаватися як

$$\mathbf{f}_d = f_m \sin\left(2\pi \tilde{t} - \varphi_0\right), \tag{5.1a}$$

$$\mathbf{h} = \cos \psi_h(\tilde{t}) \, \mathbf{e}_x + \sin \psi_h(\tilde{t}) \, \mathbf{e}_y, \qquad (5.1b)$$

тут  $\varphi_0$  – початкова фаза, періодичної сили  $f_m$  – її амплітуда,  $\psi_h$  – азимутальний кут магнітного поля, який задано періодичною функцією безрозмірного часу  $\tilde{t}$ , що задовольняє умовам  $\psi_h(1/2 + \tilde{t}) = -\psi(\tilde{t})$ . Остання умова є так званою умовою асиметрії, що є важливою для генерування сили Магнуса. Очевидно, що у безрозмірному часі  $\psi_h(\tilde{t})$  має період, який дорівнює одиниці. З урахуванням характеру дії такого зовнішнього поля, рівняння Ланжевена у відносно полярних кутових координат відповідає загальній векторній формі (2.5) та аналогічне до системи рівнянь (2.6)

$$\dot{\theta} = \frac{1}{\tau_1} \cos \theta \cos(\psi_h - \phi) + \sqrt{\frac{2}{\tau_2}} \left( \zeta_y \cos \phi - \zeta_x \sin \phi \right), \qquad (5.2a)$$

$$\dot{\phi} = \frac{\sin(\psi_h - \phi)}{\tau_1 \sin \theta} - \sqrt{\frac{2}{\tau_2}} \Big[ (\zeta_x \cos \phi + \zeta_y \sin \phi) \cot \theta - \zeta_z \Big].$$
(5.2b)

У подальшому рівняння 5.2 зручно подати відносно змінних  $\theta \ \psi_{\phi} = \psi_h - \phi$ 

$$\dot{\theta} = \frac{1}{\tau_1} \cos \theta \cos \psi_{\phi} + \sqrt{\frac{2}{\tau_2}} \left( \zeta_y \cos(\psi_h - \psi_{\phi}) - \zeta_x \sin(\psi_h - \psi_{\phi}) \right), \quad (5.3a)$$

$$\dot{\psi}_{\phi} = \dot{\psi}_{h} - \frac{\sin \psi_{\phi}}{\tau_{1} \sin \theta} + \sqrt{\frac{2}{\tau_{2}}} \left[ \left( \zeta_{x} \cos(\psi_{h} - \psi_{\phi}) + \zeta_{y} \sin(\psi_{h} - \psi_{\phi}) \right) \cot \theta - \zeta_{z} \right]$$
(5.3b)

Для подальшого чисельного моделювання зручно скористатись ефективною системою рівнянь, аналогічною до (2.23), яка була б статистично еквівалентна (5.3). Якщо виконати процедуру, засновану на рівнянні Фоккера-Планка, то так само як з системи рівнянь (2.6) було отримана система рівнянь (2.23), в даному випадку з системи (5.3) можна одержати

$$\frac{d\theta}{d\tilde{t}} = \cos\theta\cos\psi_{\phi} + \frac{1}{\kappa}\cot\theta + \sqrt{\frac{2}{\kappa}}\widetilde{\mu}_{1}, \qquad (5.4a)$$

$$\frac{d\psi_{\phi}}{d\tilde{t}} = \frac{d\psi_{h}}{d\tilde{t}} - \frac{\sin\psi_{\phi}}{\sin\theta} - \sqrt{\frac{2}{\kappa}} \frac{1}{\sin\theta} \widetilde{\mu}_{2}.$$
(5.4b)

Ефект Магнуса полягає у наявності поступального руху, зумовленого періодичними діями з нульовим середнім. Цей рух доцільно характеризувати одиничним вектором швидкості, який відповідно до [5,189] у безрозмірному вигляді записується як

$$\mathbf{v} - \frac{\operatorname{Re}_{r}}{6\omega_{m}}\boldsymbol{\omega} \times \mathbf{v} = \sin\left(2\pi\tilde{t} - \varphi_{0}\right)\mathbf{e}_{x} + \sqrt{3\eta R\Omega k_{B}T}\boldsymbol{\nu}, \qquad (5.5)$$

де число Рейнольдса для випадку обертання визначається як  $\operatorname{Re}_r = \rho_l R^2 \omega_m / \eta$ ,  $\rho_l$  – густина рідини,  $\omega_m = \max |\boldsymbol{\omega}|$  та  $v_m = f_m / 6\pi \eta R$ ,  $\boldsymbol{\nu}$  – випадкова сила, що моделює дію теплових флуктуацій з характеристиками

$$\langle \nu_i(\tilde{t}) \rangle = 0, \qquad \langle \nu_i(\tilde{t}) \nu_j(\tilde{t}') \rangle = 2\delta_{ij}\delta(\tilde{t} - \tilde{t}').$$
 (5.6)

Відповідно до [189], випадкова швидкість може бути записана як

$$\mathbf{v} = \left(\mathbf{e}_x + \frac{\operatorname{Re}_r}{6\omega_m}\mathbf{\omega} \times \mathbf{e}_x\right)\sin\left(2\pi\tilde{t} - \varphi_0\right) + \sigma_m\left(\mathbf{\nu} + \frac{\operatorname{Re}_r}{6\omega_m}\mathbf{\omega} \times \mathbf{\nu}\right), \qquad (5.7)$$

де  $\sigma_m = \sqrt{\Omega k_B T / 2\pi f_m v_m}$  – безрозмірний параметр, що характеризує інтенсивність флуктуацій випадкової сили. Варто зазначити, що вираз (5.7) є справедливим лише тоді, коли кутова швидкість  $\boldsymbol{\omega}$  є регулярною та не містить внеску від теплових флуктуацій. Це повязано тим, що множення двох функцій, що містять Гаусівські шуми, є математично не визначеною операцією Однак, цю проблему можна обійти, якщо шукати лише середню швидкість дрейфу. Якщо врахувати, що  $\langle \boldsymbol{\nu} \rangle = 0$  то тоді також будуть справедливими співідношення  $\langle \boldsymbol{\omega} \times \boldsymbol{\nu} \rangle = \langle \boldsymbol{\omega} \rangle \times \langle \boldsymbol{\nu} \rangle = 0$  і в результаті шукана середня швидкість запишеться як

$$\langle \mathbf{v} \rangle = \left( \mathbf{e}_x + \frac{\operatorname{Re}_r}{6\omega_m} \langle \mathbf{\omega} \rangle \times \mathbf{e}_x \right) \sin\left(2\pi \tilde{t} - \varphi_0\right),$$
 (5.8)

або з врахуванням (2.5)

$$\langle \mathbf{v} \rangle = [\mathbf{e}_x - \gamma \, \mathbf{e}_x \times (\langle \mathbf{u} \rangle \times \mathbf{h})] \sin (2\pi \tilde{t} - \varphi_0),$$
 (5.9)

де  $\gamma = \text{Re}_r \tau_1^{-1} \Omega / 12 \pi \omega_m = \rho_l R^2 M H_m / 36 \eta^2$  – параметр, що характеризує внесок ефекту Магнуса у рух наночастинки.

Далі введемо поняття середньої швидкості дрейфу  $\langle \mathbf{s} \rangle$  у вигляді

$$\langle \mathbf{s} \rangle = \lim_{n \to \infty} \int_{n}^{n+1} \langle \mathbf{v}(\tilde{t}) \rangle \, d\tilde{t}.$$
 (5.10)

Тут n є цілим числом, тобто інтегрування здійснюється на одному періоді зовнішнього поля. Далі скористаємося поданням магнітного моменту **u** через сферичні координати і виразом для зовнішнього поля (5.1a) для спрощення виразу для  $\langle \mathbf{s} \rangle$ 

$$\mathbf{e}_x \times (\langle \mathbf{u} \rangle \times \mathbf{h}) = -\langle \sin \theta \sin \psi_\phi \rangle \, \mathbf{e}_y + \langle \cos \theta \rangle \cos \psi \, \mathbf{e}_z. \tag{5.11}$$

Далі з використанням подання  $\tilde{t} = n + v$ , де  $v \in (0, 1)$  – певна змінна, можна записати  $\lim_{n\to\infty} \langle \mathbf{v}(n+v) \rangle = \langle \mathbf{v}_{st}(v) \rangle$ , де індекс 'st' символізує знаходження стаціонарного стану. Нарешті, з врахуванням умов симетрії  $\langle \cos \theta_{st}(v) \rangle = 0$  та вищенаведеного аналізу, одержуємо  $\langle \mathbf{s} \rangle = \langle s_y \rangle \mathbf{e}_y$  та

$$\langle s_y \rangle = \gamma \int_0^1 \langle \sin \theta_{\rm st}(\upsilon) \sin \psi_{\phi \rm st}(\upsilon) \rangle \sin (2\pi \upsilon - \varphi_0) \, d\upsilon.$$
 (5.12)

Тобто, шуканий дрейф має місце вздовж вісі *у* у вибраних координатах, а середня швидкість в загальному випадку визначатиметься як (5.12). Варто зауважити: ця швидкість чисельно дорівнює силі Магнуса, яка осереднина за періодом поля та за тепловими флуктуаціями. У загальнму випадку ця величина може бути обрахована чисельно. Однак, для певних випадків, можна отримати також і аналітичні результати [5]. Так, коли зовнішнє поле (5.1а) задається виразом

$$\mathbf{h} = \cos\psi_m \cos\left(2\pi\tilde{t}\right) \mathbf{e}_x + \sin\psi_m \cos\left(2\pi\tilde{t}\right) \mathbf{e}_y,\tag{5.13}$$

загальна формула (5.12) дозволяє отримати для планарної моделі (тобто, коли  $\theta \equiv \pi/2$ )

$$\langle s_y \rangle = -0.5\pi \psi_m \gamma \kappa^2 \tau_1 \cos \varphi_0, \qquad (5.14)$$

а в загальному випадку

$$\langle s_y \rangle = \frac{1}{6} \pi \psi_m \gamma \kappa^2 \tau_1 \cos \varphi_0, \qquad (5.15)$$

## 5.3. Температурні ефекти в дрейфовому русі: чисельні результати

Для перевірки аналітичних результатів (5.14) і (5.15) на базі рівнянь (5.4) було проведено чисельне моделювання. Розв'язок шукався у вигляді  $\psi_{\phi}^{(i)}(n+v)$ та  $\theta^{(i)}(n+v)$  в кожному *i*-у запуску. Для кращого осереднення параметр *n* обирався якомога більшим ( $n \gg 1$ ). У такий спосіб були розраховані значення  $\langle \sin \psi_{\phi st}(v) \rangle$  і  $\langle \sin \theta_{st}(v) \sin \psi_{\phi st}(v) \rangle$  відповідно до виразу

$$\langle \sin \psi_{\phi \text{st}}(\upsilon) \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \sin \psi_{\phi}^{(i)}(n+\upsilon)$$
(5.16)

i

$$\langle \sin \theta_{\rm st}(\upsilon) \sin \psi_{\phi \rm st}(\upsilon) \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \sin \theta^{(i)}(n+\upsilon) \sin \psi_{\phi}^{(i)}(n+\upsilon), \qquad (5.17)$$

де  $N(\gg 1)$  – загальна кількість запусків (ці формули стають точними, якщо  $N, n \to \infty$ ). Далі, використовуючи вирази (5.16) і (5.17), була визначена швидкість дрейфу, що відповідає моделі плоского ротора та у загальному випадку з використанням виразу (5.12).

Залежності безрозмірної швидкості дрейфу  $\langle s_y \rangle / \gamma$  від відносної інтенсивності теплового шуму  $\kappa$ , які отримані за описаними вище процедурами для двох моделей, показані на рис. 5.1 (використовувалися наступні параметри моделювання:  $1/\tau_1 = 0.01$ ,  $\psi_m = 1$  рад,  $\varphi_0 = 0$  рад, n = 200, та  $N = 10^7$ ). Як видно, результати моделювання добре узгоджуються з теоретично передбаченими, якщо параметр  $\kappa$  достатньо малий. Це підтверджує як наші аналітичні результати, так і процедуру моделювання. Природно, що з ростом інтенсивності шуму відмінності ростуть, а на чисельні результати мають сильний вплив флуктуації намагніченості, які відбуваються поза площиною ротатора. Тому, щоб врахувати ці флуктуації, використовується загальна система ефективних стохастичних диференціальних рівнянь (5.4) без припущення  $\theta \equiv \pi/2$ .



Рис. 5.1. Приведена швидкість дрейфу як функція  $\kappa$  при  $\kappa \ll 1$ . Трикутні символи подають результати чисельного моделювання, а суцільні лінії 1 та 2 репрезентують теоретичні результати (5.14) і (5.15) відповідно.

Слід зазначити, що згідно з рівняннями (5.4) вплив температури на обертальні властивості наночастинок може відбуватися не тільки через явну залежність параметру  $\tau_2$  від температури, але також внаслідок температурної залежності намагніченості M та динамічної в'язкості  $\eta$ . Для ілюстрації розглянемо наночастинки кобальту, що завислі у воді, температура якої змінюється в інтервалі  $\Delta T$  від 273 К (температура, близька до замерзання води) до 373 К (температура, близька до кипіння води). Оскільки температура Кюрі кобальта 1.398 · 10<sup>3</sup> К (див. посилання [193], табл. 2.3), намагніченість кобальту повільно змінюється в інтервалі  $\Delta T$ . Тому M в данному температурному інтервалі можна вважати постійною величиною, наприклад,  $M = 1.422 \cdot 10^3$  ерг/Гс см<sup>3</sup> – намагніченість насичення кобальту за кімнатної температури (див. посилання [193], табл. 2.9). Навпаки, динамічна в'язкість води сильно зменшується зі зростанням температури. Наприклад, згідно з експериментальними даними (див. посилання [194], розд. 6), отримуємо  $\eta|_{T=273.64 \text{ K}}/\eta|_{T=371.24 \text{ K}} = 6.095$ . Оскільки параметри  $\tau_1$  та  $\tau_2$  залежать від  $\eta$ , це означає, що необхідно враховувати температурну залежність динамічної в'язкості, щоб коректно описати дрейф таких частинок. Для цього використовується наближена формула

$$\eta = 10^{A + B/(T - C)},\tag{5.18}$$

яка добре відтворює експериментальні дані для динамічної в'язкості води в даному інтервалі  $\Delta T$  (див. посилання [194], табл. 4.9). Тут, A = -3.5318, B = 220.57, C = 149.39, T береться в кельвінах, а  $\eta$  – в пуазах (П).



Рис. 5.2. Температурна залежність приведеної швидкості дрейфу наночастинок кобальту з різним радіусом, завислих у воді. Залежність, якщо  $\kappa = 0$ , відповідає великому радіусу частинки.

Використовуючи описану вище процедуру, також була чисельно визначена безрозмірна швидкість дрейфу  $\langle s_y \rangle / \gamma$  як функція температури для наночастинок кобальту диспергованих у воді (у всіх обчисленнях вважажлось, що n = 50і  $N = 10^5$ ). Рис. 5.2 ілюструє температурну залежність цієї швидкості у випадках, коли  $H_m = 10^2$  E,  $\psi_m = 1$  рад,  $\Omega = 10^6$  рад/с,  $\varphi_0 = 0$  рад, R = 2нм (лінія з перевернутими трикутниками), і R = 3 нм (лінія із звичайними трикутниками). При збільшенні радіусу частинки R швидкість дрейфу швидко наближається до граничної функції (представленої лінією з ромбами), що відповідає випадку  $\tau_2^{-1} = 0$ . Зокрема, різницею між цими функціями можна знехтувати вже при R > 5 нм (цей радіус повільно зростає зі зменшенням  $H_m$ ). Це означає, що теплові флуктуації зменшують швидкість дрейфу для відносно малих частинок (коли R < 5 нм), тоді як у випадку більших частинок їх дрейфова швидкість залежить від температури виключно через температурну залежність динамічної в'язкості води. У цьому контексті важливо зазначити, що відповідно до викладеної вище теорії, детерміністичний підхід до опису дрейфового руху феромагнітних частинок справедливий, якщо  $R \gtrsim 10$  нм. Цей факт значно розширює діапазон придатності детерміністичної теорії, який був приблизно оцінений як  $R \gtrsim 100$  нм [191].

Відповідно до (5.12) швидкість дрейфу  $\langle s_y \rangle$  – це періодична функція з початковою фазою  $\varphi_0$ , що задовольняє умові  $\langle s_y \rangle |_{\pi+\varphi_0} = -\langle s_y \rangle |_{\varphi_0}$ . Внаслідок цього  $\langle s_y \rangle$  при фіксованій температурі може змінюватися напрямок дрейфу шляхом зміни  $\varphi_0$ . Можна також очікувати, що зміна напрямку дрейфу може бути викликана зміною температури T, якщо початкова фаза вибрана належним чином. Дійсно, припускаючи для простоти, що теплові флуктуації відсутні (тобто,  $\tau_2^{-1} = 0$ ), з рівняння (5.4b) випливає, що його стаціонарний розв'язок  $\psi_{\phi \text{st}}(\tilde{t})$  і, отже, швидкість дрейфу (5.12) залежать від параметру  $\tau_1$  (докладніше див. посилання [192]) і від температури (оскільки  $\eta = \eta(T)$ ). Це означає, що якщо початкова фаза  $\varphi_0$  і близька до значення, що є розв'язком рівняння  $\langle s_y \rangle = 0$ , то зміна знака  $\langle s_y \rangle$  може відбуватися завдяки зміні T. Ці очікування повністю підтверджені результатами моделювання, поданими на Рис. 5.3.

Для того, щоб отримати більш повне уявлення про поведінку дрейфової швидкості Со наночастинок, була розрахувана її залежність від амплітуди поля  $H_m$ , його частоти  $\Omega$  і максимального значення кута  $\psi_m$ . Залежність  $\langle s_y \rangle / \gamma$ від  $H_m$  для наночастинки з радіусом R = 5 нм, яка визначена за кімнатної температури T = 295 K,  $\Omega = 5 \cdot 10^5$  рад/с та  $\psi_m = 1$  рад, показана на Рис. 5.4 для різних кутів  $\varphi_0$ . Оскільки зміна  $H_m$  еквівалентна зміні параметра  $\tau_1$ , отримані результати аналогічні результатам, отриманим у детерміністичному підході,



Рис. 5.3. Приведена швидкість дрейфу наночастинки кобальту як функція температури для різних значень початкової фаза  $\varphi_0$ . Радіус частинки становить R = 3 нм, а інші параметри такі ж, як на Рис. 5.2.

див. [192]. Рис. 5.5 ілюструє залежність  $\langle s_y \rangle / \gamma$  від  $\Omega$  для T = 295 К,  $H_m = 10$  Е,  $\psi_m = 1$  рад,  $\varphi_0 = 0$  рад і різних радіусів частинки. Як видно, зменшення розміру частинки зменшує абсолютну величину безрозмірної швидкості дрейфу і зміщує мінімум цієї швидкості праворуч. Це відбувається тому, що величина теплових флуктуацій, яка характеризується параметром  $\tau_2$ , зростає при зменшенні розміру частинок, відповідно до визначень параметрів  $\tau_1$  та  $\tau_2$  (див. експлікації до системи рівнянь (2.6)). Нарешті, на Рис. 5.6 показана залежність  $\langle s_y \rangle / \gamma$  від  $\psi_m$ , яка розрахована для R = 5 нм,  $H_m = 10$  Е,  $\Omega = 5 \cdot 10^5$  рад/с,  $\phi = 0$  рад і різних температур. У цьому випадку вплив температури на приведену дрейфову швидкість обумовлений як температурною залежністю динамічної в'язкості води, так і тепловими флуктуаціями. Слід також мати на увазі, що залежність розмірної дрейфової швидкості  $v_{dr} = v_m \langle s_y \rangle$  від температури відрізняється від приведеної швидкості дрейфу  $\langle s_y \rangle / \gamma$ , оскільки параметри  $v_m$  і  $\gamma$  залежать від T через динамічно в'язкість води.

Нарешті, оцінимо характерну швидкість  $v_m = f_m/6\pi\eta R$  і швидкість дрейфу  $v_{\rm dr}$  для Со наночастинок завислих у воді за кімнатної температурі. Якщо керуюча сила  $\mathbf{f}_d$  породжується градієнтним магнітним полем  $\mathbf{H}_g =$  $gx \sin(\Omega t - \varphi_0) \mathbf{e}_x$  (g – градієнт магнітного поля), то її амплітуда може бути оцінена як  $f_m = VMg$  і, отже,  $v_m = 2R^2Mg/9\eta$ . Оскільки характерна швид-



Рис. 5.4. Безрозмірна швидкість дрейфу кобальтової наночастинки як функція величини магнітного поля  $H_m$  для різних значень початкової фази  $\varphi_0$ . Лінія 1 відповідає  $\varphi_0 = 0.4$  рад, лінія 2 –  $\varphi_0 = 2.0$  рад, а лінія 3 –  $\varphi_0 = (\pi + 0.4)$  рад.

кість  $v_m$  і параметр  $\gamma$  сильно зростають зі збільшенням розміру частинок, очікується, що дрейф, індукований силою Магнуса, може бути використаний для сепарації великих частинок (тому що вони дрейфують з відносно великими швидкостями). Зокрема, припускаючи що R = 100 нм (хоча цей радіус перевищує критичний [193], однодоменний стан може існувати внаслідок великого магнітного поля),  $g = 10^3$  E/см,  $H_m = 10^3$  E і беручи до уваги, що  $\eta = 9.62 \cdot 10^{-3}$ П для T = 295 K, отримуємо  $v_m = 3.29 \cdot 10^{-3}$  см/с і  $\gamma = 4.27 \cdot 10^{-2}$ . Тому, приймаючи  $\langle s_y \rangle / \gamma = -0.17$  (див. Рис. 5.2, лінія з маркерами у вигляді ромбів), знаходимо  $v_{dr} = -239$  нм/с. Слід також зазначити, що швидкість дрейфу може бути збільшена шляхом відповідного вибору зовнішніх параметрів, за яких суттєве зміщення наночастинок може відбуватися за порівняно короткі проміжки часу [191].

#### 5.4. Висновки до розділу 5

Таким чином, розроблена в даному дисертаційному дослідженні методологія досить корисна із незначними змінами може бути адаптована до низки інших завдань. І в даному розділі було продемонстровано як даний підхід дозволяє описати дрейф феромагнітних наночастинок, завимлих у в'язкій рідині, під дією сили Магнуса. В основі цього ефекту покладено ідею про те, що якщо



Рис. 5.5. Частотна залежність безрозмірної швидкості дрейфу для різних радіусів наночастинок кобальту. Лінія 1 відповідає великому радіусу ( $\kappa = 0$ ), лінія 2 – R = 5 нм, а лінія 3 – R = 4 нм. Вісь частоти  $\Omega$  подана для зручності у логарифмічному масштабі.



Рис. 5.6. Безрозмірна швидкість дрейфу наночастинки кобальту як функція максимального значення  $\psi_m$  для різних температур.

коливальний та обертальний рухи наночастинки певним чином синхронізовані, тоді усереднений за періодом зовнішніх дій шлях може бути відмінним від нуля. Саме це і складає сутність спрямованого транспорту наночастинок у напрямку, перпендикулярному до осі їх коливань. Встановлено, що початкова фаза магнітного поля та кут повороту магнітного поля є важливими керуючими параметрами дрейфового руху частинок. Зокрема, вибором початкової фази можна визначати напрям дрейфового руху.
Було верифіковано чисельно побудовану статистичну теорію дрейфу завислих феромагнітних наночастинок, в якій враховується як температурна залежність динамічної в'язкості рідини, так і теплові флуктуації, що генерують броунівський поступальний та обертальний рухи таких частинок. Проаналізовані залежності середньої швидкості дрейфу для різних значень параметрів системи. Найбільш важливим з точки зору практичних застосувань і неочікуваних нових результатів роботи є встановлення існування умови, коли зміна температури призводить до зміни напрямку дрейфу наночастинок на протилежний.

## ОСНОВНІ ВИСНОВКИ

У дисертаційній роботі, використовуючи модель модель з вмороженим магінтним моментом вивчено відгук феромагнітної рідини на зовнішнє періодичне поле. За допомогою методів статистичної та математичної фізики, методів чисельного моделювання, та технік паралельних обчислень описано низку магнітних, теплових та транспортних періодично збуджених систем феромагнітних наночастинок, розподілених у в'язкій рідині. На захист виносяться наступні основні наукові результати.

1. Розвинено теорію відгуку наночастинок з вмороженим магнітним моментом на зовнішнє змінне поле. В її рамках з єдиних позицій описано низку динамічних та стохастичних ефектів з метою виявлення механізму контролю швидкості нагрівання середовища у методі магнітної гіпертермії. Вперше отримано низку аналітичних виразів, зокрема для обертових траєкторій наночастинки та потужності втрат. Встановлено умови застосовнаності детерміністичного підходу та залежний від частоти характер впливу теплових флуктуацій на нагрівання ферорідин змінним зовнішнім полем. Розроблено теоретичну базу для методів перцезійного контролю процесу нагрівання.

2. Методом молекулярної динаміки вперше досліджено конкуруючий вплив теплового шуму та дипольної взаємодії на енергію змінного поля, яку поглинає ферорідина. Показано, що різниця між детерміністичним та стохастичним випадком є суттєвою для малих частот, однак з ростом частоти така різниця стає незначною. Даний ефект пояснюється характером вимушеної динаміки наночастинок: за великих частот відбуваються лише незначні коливання навколо власних рівноважних положень. Вперше встановлено існування умов, за яких в досліджуваній системі спостерігається конструктивна роль шуму, що полягає у збільшенні енергії, яка поглинається зі зростанням температури внаслідок руйнування впорядкування у кластерах наночастинок та переходу окремих наночастинок з одного квазі-рівноважного стану до іншого. 3. Розроблено продуктивний та універсальний метод чисельного моделювання взаємодіючих систем із шумом, типовим прикладом яких є система феромагнітних наночастинок, завислих у рідині. Метод ґрунтується на ефективному рівнянні Ланжевена, отриманого за допомогою рівняння Фоккера Планка. Можливість трактувати тепловий шум за Іто суттєво зменшує час чисельного розрахунку на кожній ітерації. Обчислення дипольної взаємодії оптимізувалось за допомогою алгоритма Барнса-Хата, який точно враховує кореляцію напрямків намагніченості найближчих наночастинок. Нарешті, важливим фактором продуктивності є застосування технології паралельних обчислень CUDA для графічних процесорів. Розвинута методологія має великий потенціал адаптації до інших динамічних систем.

4. Вперше отримані залежності середньої швидкості дрейфу феромагнітних наночастинок, що відбувається завдяки ефекту Магнуса, від розміру наночастинок, початкової фази змінного поля, що діє на наночастинку, та температури. Послуговуючись ефективними рівняннями Ланжевена, було верифіковано розроблену раніше теорію дрейфу наночастинок, що виникає внаслідок дії сили Магнуса. Встановлені умови, за яких температурні ефекти стають визначальними для швидкості дрейфу. Зокрема, вперше встановлено умови, за яких зміна температури призводить до зміни напрямку дрейфу наночастинок на протилежний.

## СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

- 1. Large-scale ferrofluid simulations on graphics processing units / A.Yu. Polyakov, T.V. Lyutyy, S. Denisov et al. // Computer Physics Communications. - 2013. - Vol. 184, no. 6. - P. 1483 - 1489. - URL: http: //www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0010465513000337.
- Lyutyy T. V., Reva V. V., Polyakov A. Yu. Simulation of Ferrofluids Properties in Confined Domains // J. Nano- Electron. Phys. 2012. Vol. 4, no. 4. P. 04027. URL: https://jnep.sumdu.edu.ua/en/component/content/full{\\_}article/873.
- Rotational properties of ferromagnetic nanoparticles driven by a precessing magnetic field in a viscous fluid / T. V. Lyutyy, S. I. Denisov, V. V. Reva, Yu. S. Bystrik // Phys. Rev. E. - 2015. - Oct. - Vol. 92. - P. 042312. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.92.042312.
- 4. Lyutyy T. V., Reva V. V. Energy dissipation of rigid dipoles in a viscous fluid under the action of a time-periodic field: The influence of thermal bath and dipole interaction // Phys. Rev. E. - 2018. - May. - Vol. 97. - P. 052611. -URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.97.052611.
- 5. Temperature effects on drift of suspended single-domain particles induced by the Magnus force / S. I. Denisov, T. V. Lyutyy, V. V. Reva, A. S. Yermolenko // Phys. Rev. E. - 2018. - Mar. - Vol. 97. - P. 032608. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.97.032608.
- Лютый Т. В., Рева В. В. Динамика ферромагнитных наночастиц в жидкости // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2011. Матеріали та програма науково-технічної конференції. — 2011. — С. 29.
- Лютый Т. В., Денисов С. И., Рева В. В. Эффективная система уравнений Ланжевена для вращательного движения однодоменных ферромагнитных частиц // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2014. Матеріали та програма науково-технічної конференції. — 2014. — С. 71.

- Reva V. V., Lyutyy T. V., Denisov S. I. Brownian Rotational Motion of Ferromagnetic Nanoparticle in Liquid // Proceedings of the 3-rd International Conference Nanomaterials: Applications and Properties, Lviv, 2014. — Vol. 3. — 2014. — P. 01MFPM01.
- 9. Reva V. V., Lyutyy T. V., Denisov S. I. Fokker-Planck Equation for the Spherical Motion of Ferromagnetic Nanoparticles in a Viscous Liquid // 6th International Conference Physics of Liquid Matter: Modern Problems – PLMMP-Kyiv 2014. – 2014. – P. 183.
- 10. Лютый Т. В., Рева В. В. Эффективное уравнение Ланжевена для вращательной динамики ферромагнитной наночастицы // Тези та програма Школи-семінара «Багатомасштабне моделювання фізичних процесів у конденсованих середовищах», 21-23 жовтня 2014 р., ІПФ НАН України, м.Суми. — 2014. — С. 25.
- Reva V. V., Lyutyy T. V., Partyka J. High-Performance Simulation of a Ferrofluid in a Circularly-Polarized Field // 9th International Conference New Electrical and Electronic Technologies and their Industrial Implementation, Zakopane, Poland, June 23–26, 2015. 2015. P. 142.
- 12. Reva V. V., Lyutyy T. V., Denisov S. I. Forced rotation of a ferromagnetic fine particle in a viscous carrier: the stationary probability density // International Conference Dynamical Systems and Their Applications, Kyiv, Ukraine June 22–26, 2015. — 2015. — P. 36.
- Лютый Т. В., Денисов С. И., Рева В. В. Вынужденное сферическое движение магнитной частицы в жидкости: термические эффекты // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2015. Матеріали та програма науковотехнічної конференції. — 2015. — С. 67.
- 14. Лютый Т. В., Рева В. В. Ферромагнитная наночастица в жидкости: Броуновское вращение и поглощение энергии // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2016. Матеріали та програма науково-технічної конференції. — 2016. — С. 37.
- 15. Reva V. V., Lyutyy T. V. Microwave absorption by a rigid dipole in a viscous fluid //

2016 II International Young Scientists Forum on Applied Physics and Engineering (YSF). -2016. - Oct. - P. 104–107.

- 16. Reva V. V., Lyutyy T. V. The Efficiency of RF-Field Energy Absorption by Ferromagnetic Nanoparticle in a Liquid // International School and Conference on Nanoscience and Quantum Transport 8 – 14 October 2016, Kyiv, Ukraine. — 2016. — P. 23.
- 17. Лютий Т. В., Рева В. В. Вплив колективних ефектів на контрольоване нагрівання феррорідини змінним магнітним полем // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2017. Матеріали та програма науково-технічної конференції. — 2017. — С. 63.
- Рева В. В., Лютий А. Т., Лютий Т. В. Статистичні властивості систем феромагнітних наночастинок: модель жорсткого диполя // Фізика, електроніка, електротехніка, ФЕЕ-2020. Матеріали та програма науково-технічної конференції. 2020. С. 78.
- Reva V. V., Lyutyy T. V. Interaction Effects in RF-Fields Energy Absorbtion by a Ferrofluid // IVIII International Confer-ence for Professional and Young Scientists Low Temperature Physics ICPYS-LTP, May 29 – June 2, 2017, Kharkiv, Ukraine. — 2017. — P. 82.
- 20. Reva V. V., Lyutyy V., Yermolenko A. S. Energy dissipation of interacting rigid dipoles driven by the RF-field in a viscous fluid // 2017 IEEE International Young Scientists Forum on Applied Physics and Engineering (YSF). – 2017. – Oct. – P. 303–306.
- Reva V. V., Lyutyy T. V. Statistical properties of rigid dipole ensemble: analytical and numerical results // VI Всеукраїнська науково-практична конфренція "Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики". 2020. С. 75–76.
- 22. Magnetic Properties of Fine Particles / Ed. by J.L. Dormann, D. Fiorani. Amsterdam : Elsevier, 1992. — ISBN: 978-0-444-89552-3.
- 23. Lu An-Hui, Salabas E. L., Schüth Ferdi. Magnetic Nanoparticles: Synthesis, Protection, Functionalization, and Application // Angewandte

Chemie International Edition. — 2007. — Vol. 46, no. 8. — P. 1222–1244. — https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/anie.200602866.

- 24. Гусев Александр, Ремпель Андрей. Нанокристаллические материалы. Москва : Физматлит, 2000. С. 224. ISBN: 5922100750.
- 25. Вонсовский С.В. Магнетизм. Магнитные свойства диа-, пара, ферро-, антиферро-, и ферримагнетиков. Москва : Наука, 1971. С. 1032.
- 26. Кондорский Е.И. Микромагнетизм и перемагничивание квазиоднодоменных частиц // Известия АН СССР Сер. физ. — 1978. — Т. 42, № 8. — С. 1638–1645.
- Clifton Stoner Edmund, P. Wohlfarth E. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys // Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences. 1948. May. Vol. 240, no. 826. P. 599–642. URL: https://doi.org/10.1098/rsta.1948.0007.
- 28. Stoner E. C., Wohlfarth E. P. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys // IEEE Transactions on Magnetics. — 1991. — July. — Vol. 27, no. 4. — P. 3475–3518.
- 29. Experimental Evidence of the Néel-Brown Model of Magnetization Reversal /
  W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach et al. // Phys. Rev. Lett. –
  1997. Mar. Vol. 78. P. 1791–1794. URL: https://link.aps.org/
  doi/10.1103/PhysRevLett.78.1791.
- 30. Macroscopic Quantum Tunneling of Magnetization of Single Ferrimagnetic Nanoparticles of Barium Ferrite / W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach et al. // Phys. Rev. Lett. — 1997. — Nov. — Vol. 79. — P. 4014–4017. — URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.79.4014.
- 31. Néel Louis. Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation // J. Phys. Radium. — 1954. — Vol. 15, no. 4. — P. 225–239. — URL: https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00234899.
- 32. Farle Michael. Ferromagnetic resonance of ultrathin metallic layers // Reports on Progress in Physics. — 1998. — jul. — Vol. 61, no. 7. — P. 755–826. — URL: https://doi.org/10.1088/0034-4885/61/7/001.

- 33. Giant Magnetic Anisotropy of Single Cobalt Atoms and Nanoparticles / P. Gambardella, S. Rusponi, M. Veronese et al. // Science. — 2003. — Vol. 300, no. 5622. — P. 1130–1133. https://science.sciencemag.org/content/300/5622/1130.full.pdf.
- 34. Brown William Fuller. Thermal Fluctuations of a Single-Domain Particle // Phys. Rev. - 1963. - Jun. - Vol. 130. - P. 1677-1686. - URL: http://link. aps.org/doi/10.1103/PhysRev.130.1677.
- 35. Bedanta Subhankar, Kleemann Wolfgang. Supermagnetism // Journal of Physics D: Applied Physics. - 2008. - dec. - Vol. 42, no. 1. - P. 013001. - URL: https://doi.org/10.1088/0022-3727/42/1/013001.
- 36. Denisov S.I., Yunda A.N. Thermal-induced inversion of the magnetic moment in superparamagnetic particles // Physica B: Condensed Matter. — 1998. — Vol. 245, no. 3. — P. 282 - 287. — URL: http://www.sciencedirect.com/ science/article/pii/S0921452697008788.
- 37. Denisov S. I., Trohidou K. N. Fluctuation theory of magnetic relaxation for two-dimensional ensembles of dipolar interacting nanoparticles // Phys. Rev.
  B. - 2001. - Oct. - Vol. 64. - P. 184433. - URL: https://link.aps.org/ doi/10.1103/PhysRevB.64.184433.
- 38. Denisov S. I., Lyutyy T. V., Trohidou K. N. Magnetic relaxation in finite two-dimensional nanoparticle ensembles // Phys. Rev. B. - 2003. -Jan. - Vol. 67. - P. 014411. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/ PhysRevB.67.014411.
- 39. Coffey William T., Kalmykov Yuri P. Thermal fluctuations of magnetic nanoparticles: Fifty years after Brown // Journal of Applied Physics. — 2012. — Vol. 112, no. 12. — P. 121301. — https://doi.org/10.1063/1.4754272.
- 40. Rosensweig R.E. Ferrohydrodynamics. Shaftesbury Road, Cambridge,
  CB2 8BS, United Kingdom : Cambridge University Press, 1985. —
  ISBN: 0486678342.
- 41. Magnetic Fluids and Applications Handbook / Ed. by V. Bashtovoy,
  B. M. Berkovsky. Danbury, Connecticut, United States : Begell House

Inc., 1996. — ISBN: 978-1-56700-062-7.

- 42. Colloidal Magnetic Fluids / Ed. by Stefan Odenbach. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2009. ISBN: 978-3-540-85386-2.
- 43. Shliomis M I. Magnetic fluids // Soviet Physics Uspekhi. 1974. Vol. 17, no. 2. P. 153. URL: http://stacks.iop.org/0038-5670/17/i=2/a= R02.
- 44. Raikher Y. L., Shliomis M. I. The Effective Field Method in the Orientational Kinetics of Magnetic Fluids and Liquid Crystals // Advances in Chemical Physics. — 1994. — Vol. 87. — P. 595–751. — URL: http://dx.doi.org/10. 1002/9780470141465.ch8.
- 45. Mayer D. Future of Electrotechnic: Ferrofluidss // Advancesin Electricaland Electronic Engineering. — 2008. — Vol. 7. — P. 9–14. — URL: http: //advances.utc.sk/index.php/AEEE/article/view/44/51.
- 46. Rabinow J. The Magnetic Fluid Clutch // Transactions of the American Institute of Electrical Engineers. 1948. Jan. Vol. 67, no. 2. P. 1308–1315.
- 47. High-torque magnetorheological fluid clutch / Barkan M. Kavlicoglu, Faramarz Gordaninejad, Cahit A. Evrensel et al. // SPIE's 9th Annual International Symposium on Smart Structures and Materials, 2002, San Diego. — Vol. 4697. — 2002. — URL: https://doi.org/10.1117/12.472674.
- 48. Zrízyi M., Barsi L., Büki A. Ferrogel: a new magneto-controlled elastic medium // Polymer Gels and Networks. 1997. Vol. 5, no. 5. P. 415 427. URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0966782297000105.
- 49. Menzel Andreas M. Tuned, driven, and active soft matter // Physics Reports. 2015. Vol. 554. P. 1 45. Tuned, driven, and active soft matter. URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0370157314003871.
- 50. Conducting ferrofluid: a high-performance microwave shielding material / Monika Mishra, Avanish Pratap Singh, B. P. Singh et al. // J. Mater. Chem.
  A. 2014. Vol. 2. P. 13159-13168. URL: http://dx.doi.org/10.

1039/C4TA01681E.

- 51. Designing Of MWCNT/ Ferrofluid/ Flyash Multiphase Composite As Safeguard For Electromagnetic Radiation / Pradeep Sambyal, Avanish Pratap Singh, Meenakshi Verma et al. // Adv. Mater. Lett. — 2015. — Vol. 6. — P. 585–591. — URL: http://dx.doi.org/10.5185/amlett.2015. 5807.
- 52. Microwave shielding properties of Co/Ni attached to single walled carbon nanotubes / B. P. Singh, D. K. Saket, A. P. Singh et al. // J. Mater. Chem.
  A. 2015. Vol. 3. P. 13203-13209. URL: http://dx.doi.org/10. 1039/C5TA02381E.
- 53. Varshney Swati, Dhawan S. K. Improved Electromagnetic Shielding Performance of Lightweight Compression Molded Polypyrrole/Ferrite Composite Sheets // Journal of Electronic Materials. 2017. Mar. Vol. 46, no. 3. P. 1811–1820. URL: https://doi.org/10.1007/s11664-016-5233-7.
- 54. Varshney Swati, Dhawan S.K. Designing of Materials for EMI Shielding Applications // Microwave Materials and Applications 2V Set. Hoboken, New Jersey, USA : John Wiley & Sons, Inc., 2017. P. 575–602. ISBN: 9781119208549. URL: http://dx.doi.org/10.1002/9781119208549.ch13.
- 55. Hancock J.P., Kemshead J.T. A rapid and highly selective approach to cell separations using an immunomagnetic colloid // Journal of Immunological Methods. — 1993. — Vol. 164, no. 1. — P. 51 - 60. — URL: http: //www.sciencedirect.com/science/article/pii/002217599390275C.
- 56. Some biomedical applications of ferrofluids / Roger, J., Pons, J. N., Massart, R. et al. // Eur. Phys. J. AP. 1999. Vol. 5, no. 3. P. 321-325. URL: https://doi.org/10.1051/epjap:1999144.
- 57. Magnetic Nanocomposite Spheres Decorated with NiO Nanoparticles for a Magnetically Recyclable Protein Separation System / Jaeyun Kim, Yuanzhe Piao, Nohyun Lee et al. // Advanced Materials. — 2010. — Vol. 22, no. 1. — P. 57–60. — https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/adma.200901858.

- 58. Magnetic separation of particles and cells in ferrofluid flow through a straight microchannel using two offset magnets / Jian Zeng, Yanxiang Deng, Pallavi Vedantam et al. // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2013. Vol. 346. P. 118 123. URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304885313005064.
- 59. Applications of magnetic nanoparticles in biomedicine / Q A Pankhurst, J Connolly, S K Jones, J Dobson // Journal of Physics D: Applied Physics.— 2003.— Vol. 36, no. 13.— P. R167.— URL: http://stacks.iop.org/ 0022-3727/36/i=13/a=201.
- 60. Synthesis, characterization and MRI application of dextran-coated Fe3O4 magnetic nanoparticles / R.Y. Hong, B. Feng, L.L. Chen et al. // Biochemical Engineering Journal. 2008. Vol. 42, no. 3. P. 290 300. URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1369703X08002519.
- 61. Generation of Superparamagnetic Liposomes Revealed as Highly Efficient MRI Contrast Agents for in Vivo Imaging / Marie-Sophie Martina, Jean-Paul Fortin, Christine Menager et al. // Journal of the American Chemical Society. — 2005. — Vol. 127, no. 30. — P. 10676–10685. — PMID: 16045355. https://doi.org/10.1021/ja0516460.
- 62. Stimuli-responsive magnetic particles for biomedical applications / S.F. Medeiros, A.M. Santos, H. Fessi, A. Elaissari // International Journal of Pharmaceutics. — 2011. — Vol. 403, no. 1. — P. 139 - 161. — URL: http: //www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0378517310007738.
- 63. Ruuge E.K., Rusetski A.N. Magnetic fluids as drug carriers: Targeted transport of drugs by a magnetic field // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 1993. Vol. 122, no. 1. P. 335 339. URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/030488539391104F.
- 64. Allen Theresa M., Cullis Pieter R. Drug Delivery Systems: Entering the Mainstream // Science. 2004. - Vol. 303, no. 5665. - P. 1818-1822. https://science.sciencemag.org/content/303/5665/1818.full.pdf.
- 65. Panyam Jayanth, Labhasetwar Vinod. Biodegradable nanoparticles for

drug and gene delivery to cells and tissue // Advanced Drug Delivery Reviews. — 2003. — Vol. 55, no. 3. — P. 329 - 347. — Biomedical Microand Nano-technology. URL: http://www.sciencedirect.com/science/ article/pii/S0169409X02002284.

- 66. Magnetic fluid hyperthermia (MFH): Cancer treatment with AC magnetic field induced excitation of biocompatible superparamagnetic nanoparticles / Andreas Jordan, Regina Scholz, Peter Wust et al. // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 1999. Vol. 201, no. 1. P. 413 419. URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304885399000888.
- 67. Andrä W., Nowak H. Magnetism in Medicine: A Handbook. Boschstraße 12, 69469 Weinheim, Germany : Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2007. ISBN: 9783527405589. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/book/10.1002/9783527610174.
- 68. Rosensweig R.E. Heating magnetic fluid with alternating magnetic field // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 2002. — Vol. 252. — P. 370
  — 374. — Proceedings of the 9th International Conference on Magnetic Fluids. URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/ S0304885302007060.
- 69. Fannin P C, Charles S W. The study of a ferrofluid exhibiting both Brownian and Neel relaxation // Journal of Physics D: Applied Physics. — 1989. jan. — Vol. 22, no. 1. — P. 187–191. — URL: https://doi.org/10.1088/ 0022-3727/22/1/027.
- 70. Kötitz R., Fannin P.C., Trahms L. Time domain study of Brownian and Neel relaxation in ferrofluids // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 1995. — Vol. 149, no. 1. — P. 42 - 46. — Proceedings of the Seventh International Conference on Magnetic Fluids. URL: http://www.sciencedirect.com/ science/article/pii/0304885395003339.
- 71. Investigation of Brownian and Neel relaxation in magnetic fluids / R Kötitz, W Weitschies, L Trahms, W Semmler // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 1999. — Vol. 201, no. 1. — P. 102 – 104. — URL: http://www.

sciencedirect.com/science/article/pii/S0304885399000657.

- 72. Effects of magnetic dipolar interactions on the specific time constant in superparamagnetic nanoparticle systems / N Iacob, G Schinteie, C Bartha et al. // Journal of Physics D: Applied Physics. 2016. Vol. 49, no. 29. P. 295001. URL: http://stacks.iop.org/0022-3727/49/i=29/a=295001.
- 73. Relevant Parameters for Magnetic Hyperthermia in Biological Applications: Agglomeration, Concentration, and Viscosity / Y. Piñeiro, Z. Vargas-Osorio, M. Bañobre Lónpez et al. // IEEE Transactions on Magnetics. — 2016. — Vol. 52, no. 7. — P. 2300704. — URL: http://ieeexplore.ieee.org/abstract/ document/7381656/.
- 74. Trisnanto Suko Bagus, Kitamoto Yoshitaka. Brownian particle-kinetics in a superparamagnetic ferrofluid subjected to static magnetic-field // AIP Conference Proceedings. — 2017. — Vol. 1807, no. 1. — P. 020021. http://aip.scitation.org/doi/pdf/10.1063/1.4974803.
- 75. Improving the magnetic heating by disaggregating nanoparticles / F. Arteaga-Cardona, K. Rojas-Rojas, R. Costo et al. // Journal of Alloys and Compounds. — 2016. — Vol. 663, no. Supplement C. — P. 636 — 644. — URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/ S0925838815315413.
- 76. Predictable Heating and Positive MRI Contrast from a Mesoporous Silica-Coated Iron Oxide Nanoparticle / Katie R. Hurley, Hattie L. Ring, Michael Etheridge et al. // Molecular Pharmaceutics. — 2016. — Vol. 13, no. 7. — P. 2172–2183. — PMID: 26991550. http://dx.doi.org/10.1021/acs.molpharmaceut.5b00866.
- 77. Size-Dependent Heating of Magnetic Iron Oxide Nanoparticles / Sheng Tong, Christopher A. Quinto, Linlin Zhang et al. // ACS Nano. — 2017. — Vol. 11, no. 7. — P. 6808–6816. — PMID: 28625045. http://dx.doi.org/10.1021/acsnano.7b01762.
- 78. Effective heating of magnetic nanoparticle aggregates for in vivo nano-

theranostic hyperthermia / C Wang, C H Hsu, Z Li et al. // Int. J. Nanomedicine. — 2017. — Aug. — Vol. 12. — P. 6273-6287. — URL: https://doi.org/10.2147/IJN.S141072.

- 79. Lee Sanghoon, Jeun Minhong. Size Dependence of Alternating Current Magnetically-Induced Heating Characteristics of Ferrimagnetic MgFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> Nanoparticles in Powder and Fluidic States // Sci. Adv. Mater. 2017. May. Vol. 9. P. 804–809. URL: https://doi.org/10.1166/sam. 2017.2948.
- 80. Precessional dynamics of single-domain magnetic nanoparticles driven by small ac magnetic fields / Haiwen Xi, Kai-Zhong Gao, Yiming Shi, Song Xue // Journal of Physics D: Applied Physics. — 2006. — Vol. 39, no. 22. — P. 4746. — URL: http://stacks.iop.org/0022-3727/39/i=22/ a=002.
- 81. Usov N. A., Liubimov B. Ya. Dynamics of magnetic nanoparticle in a viscous liquid: Application to magnetic nanoparticle hyperthermia // Journal of Applied Physics. — 2012. — Vol. 112, no. 2. — P. 023901. http://dx.doi.org/10.1063/1.4737126.
- 82. Magnetomechanical coupling and ferromagnetic resonance in magnetic nanoparticles / Hedyeh Keshtgar, Simon Streib, Akashdeep Kamra et al. // Phys. Rev. B. 2017. Apr. Vol. 95. P. 134447. URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.95.134447.
- 83. Precession of a Fine Magnetic Particle with Finite Anisotropy in a Viscous Fluid / T. V. Lyutyy, O. M. Hryshko, A. A. Kovner, E. S. Denisova // J. Nano- Electron. Phys. - 2016. - Vol. 8, no. 4. - P. 04086. - URL: https: //dx.doi.org/10.21272/jnep.8(4(2)).04086.
- 84. Lyutyy T. V., Hryshko O. M., Kovner A. A. Power loss for a periodically driven ferromagnetic nanoparticle in a viscous fluid: The finite anisotropy aspects // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 2018. — Vol. 446, no. Supplement C. — P. 87 – 94. — URL: http://www.sciencedirect. com/science/article/pii/S0304885317310740.

- 85. Usadel Klaus D. Dynamics of magnetic nanoparticles in a viscous fluid driven by rotating magnetic fields // Phys. Rev. B. - 2017. - Mar. - Vol. 95. -P. 104430. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.95. 104430.
- 86. Weizenecker Jürgen. The Fokker-Planck Equation for Coupled Brown-Néel-Rotation // Physics in Medicine and Biology. 2018. Vol. 63, no. 3. – P. 035004. – URL: http://stacks.iop.org/0031-9155/63/i=3/ a=035004.
- 87. Scherer Claudio, Matuttis Hans-Georg. Rotational dynamics of magnetic particles in suspensions // Phys. Rev. E. 2000. Dec. Vol. 63. P. 011504. URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.63. 011504.
- 88. Goldstein Herbert. Classical Mechanics. Pearson Education, 2002. ISBN: 9788177582833. – URL: https://books.google.com.ua/books?id= Spy6xHWFJIEC.
- 89. Hall W. F., Busenberg S. N. Viscosity of Magnetic Suspensions // The Journal of Chemical Physics. — 1969. — Vol. 51, no. 1. — P. 137–144. http://dx.doi.org/10.1063/1.1671698.
- 90. Martsenyuk M. A., Raikher Yu. L., Shliomis M. I. On the kinetics of magnetization of suspensions of ferromagnetic particles // Zh. Eksp. Teor. Fiz. — 1973. — Vol. 65. — P. 834-841. — URL: http://jetp.ac.ru/cgi-bin/e/ index/e/38/2/p413?a=list.
- 91. Shliomis M. I. Effective Viscosity of Magnetic Suspensions // Zh. Eksp. Teor. Fiz. - 1972. - Vol. 61. - P. 2411-2418. - URL: http://jetp.ac.ru/ cgi-bin/e/index/e/34/6/p1291?a=list.
- 92. Soto-Aquino D., Rinaldi C. Magnetoviscosity in dilute ferrofluids from rotational Brownian dynamics simulations // Phys. Rev. E. - 2010. -Oct. - Vol. 82. - P. 046310. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/ PhysRevE.82.046310.
- 93. Soto-Aquino D., Rinaldi C. Nonlinear energy dissipation of magnetic

nanoparticles in oscillating magnetic fields // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 2015. — Vol. 393. — P. 46 - 55. — URL: http://www. sciencedirect.com/science/article/pii/S0304885315301335.

- 94. Raikher Yu. L., Stepanov V. I. Energy absorption by a magnetic nanoparticle suspension in a rotating field // Journal of Experimental and Theoretical Physics. 2011. Vol. 112, no. 1. P. 173–177. URL: http://dx.doi.org/10. 1134/S1063776110061160.
- 95. Raikher Yu. L., Stepanov V. I. Power losses in a suspension of magnetic dipoles under a rotating field // Phys. Rev. E. 2011. Feb. Vol. 83. P. 021401. URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.83. 021401.
- 96. Orientational dynamics of ferrofluids with finite magnetic anisotropy of the particles: Relaxation of magneto-birefringence in crossed fields / Yu. L. Raikher, V. I. Stepanov, J.-C. Bacri, R. Perzynski // Phys. Rev. E. – 2002. – Aug. – Vol. 66. – P. 021203. – URL: https://link.aps.org/doi/ 10.1103/PhysRevE.66.021203.
- 97. Felderhof B U, Jones R B. Mean field theory of the nonlinear response of an interacting dipolar system with rotational diffusion to an oscillating field // Journal of Physics: Condensed Matter. - 2003. - Vol. 15, no. 23. -P. 4011. - URL: http://stacks.iop.org/0953-8984/15/i=23/a=313.
- 98. Curie-Weiss behavior in ferrofluids / K. O'Grady, A. Bradbury, S.W. Charles et al. // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 1983. — Vol. 31, no. Part 2. — P. 958 - 960. — URL: http://www.sciencedirect.com/science/ article/pii/0304885383907552.
- 99. Morozov K.I., Lebedev A.V. The effect of magneto-dipole interactions on the magnetization curves of ferrocolloids // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 1990. — Vol. 85, no. 1. — P. 51 - 53. — URL: http: //www.sciencedirect.com/science/article/pii/030488539090015I.
- 100. Buyevich Yu.A., Ivanov A.O. Equilibrium properties of ferrocolloids // Physica A: Statistical Mechanics and its Applications. — 1992. — Vol. 190, no. 3. —

P. 276 - 294. - URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/ pii/037843719290037Q.

- 101. Ivanov Alexey O., Kuznetsova Olga B. Magnetic properties of dense ferrofluids: An influence of interparticle correlations // Phys. Rev. E. - 2001. -Sep. - Vol. 64. - P. 041405. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/ PhysRevE.64.041405.
- 102. Berkov D. V., Iskakova L. Yu., Zubarev A. Yu. Theoretical study of the magnetization dynamics of nondilute ferrofluids // Phys. Rev. E. - 2009. – Feb. - Vol. 79. - P. 021407. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/ PhysRevE.79.021407.
- 103. Huke B, Lücke M. Magnetic properties of colloidal suspensions of interacting magnetic particles // Reports on Progress in Physics. 2004. Vol. 67, no. 10. P. 1731. URL: http://stacks.iop.org/0034-4885/67/i=10/a=R01.
- 104. Onsager Lars. Electric Moments of Molecules in Liquids // Journal of the American Chemical Society. — 1936. — Vol. 58, no. 8. — P. 1486–1493. — URL: https://doi.org/10.1021/ja01299a050.
- 105. McDonald Jean-Pierre Hansen Ian. Theory of Simple Liquids 2nd Edition. — Academic Press, 1990. — ISBN: 978-0-080-57101-0. — URL: https://www.elsevier.com/books/theory-of-simple-liquids/hansen/ 978-0-08-057101-0.
- 106. Lebowitz J. L., Percus J. K. Mean Spherical Model for Lattice Gases with Extended Hard Cores and Continuum Fluids // Phys. Rev. - 1966. - Apr. -Vol. 144. - P. 251-258. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/ PhysRev.144.251.
- 107. Groh B., Dietrich S. Structural and thermal properties of orientationally ordered dipolar fluids // Phys. Rev. E. - 1996. - Mar. - Vol. 53. - P. 2509-2530. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.53.2509.
- 108. Groh B., Dietrich S. Inhomogeneous magnetization in dipolar ferromagnetic liquids // Phys. Rev. E. - 1998. - Apr. - Vol. 57. - P. 4535-4546. - URL:

https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.57.4535.

- 109. Nonmonotonic Magnetic Susceptibility of Dipolar Hard-Spheres at Low Temperature and Density / Sofia Kantorovich, Alexey O. Ivanov, Lorenzo Rovigatti et al. // Phys. Rev. Lett. 2013. Apr. Vol. 110. P. 148306. URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.110.148306.
- 110. Gould Harvey, Tobochnik Jan, Christian Wolfgang. An Introduction to Computer Simulation Methods: Applications to Physical Systems. — San Francisco, USA : Addison-Wesley Longman Publishing Co., Inc., 2006. — ISBN: 9780805377583. — URL: https://books.google.com.ua/books/about/An{\\_}Introduction{\\_ }to{\\_}Computer{\\_}Simulation{\\_}M.html.
- 111. Monte Carlo studies of the dynamics of an interacting monodispersive magnetic-particle system / J.-O. Andersson, C. Djurberg, T. Jonsson et al. // Phys. Rev. B. 1997. Dec. Vol. 56. P. 13983-13988. URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.56.13983.
- 112. Kechrakos D., Trohidou K. N. Magnetic properties of dipolar interacting single-domain particles // Phys. Rev. B. - 1998. - Nov. - Vol. 58. - P. 12169-12177. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.58.12169.
- 113. Hansen M.F., Morup S. Models for the dynamics of interacting magnetic nanoparticles // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 1998. — Vol. 184, no. 3. — P. L262 - 274. — URL: http://www.sciencedirect.com/science/ article/pii/S0304885397011657.
- 114. Nonlinear dynamic susceptibilities of interacting and noninteracting magnetic nanoparticles / P. Jonsson, T. Jonsson, J.L. Garcia-Palacios, P. Svedlindh // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2000. Vol. 222, no. 1. P. 219 226. URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304885300005576.
- 115. Magnetic hysteresis based on dipolar interactions in granular magnetic systems / Paolo Allia, Marco Coisson, Marcelo Knobel et al. // Phys. Rev. B. 1999. Nov. Vol. 60. P. 12207–12218. URL: https://link.aps.org/

doi/10.1103/PhysRevB.60.12207.

- 116. Collective magnetic properties of cobalt nanocrystals self-assembled in a hexagonal network: Theoretical model supported by experiments / V. Russier, C. Petit, J. Legrand, M. P. Pileni // Phys. Rev. B. - 2000. -Aug. - Vol. 62. - P. 3910-3916. - URL: https://link.aps.org/doi/10. 1103/PhysRevB.62.3910.
- 117. Magnetic Relaxation of Interacting Co Clusters: Crossover from Two- to Three-Dimensional Lattices / F. Luis, F. Petroff, J. M. Torres et al. // Phys. Rev. Lett. - 2002. - May. - Vol. 88. - P. 217205. - URL: https://link. aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.88.217205.
- 118. Kanai Y., Charap S. H. Simulation of magnetic aftereffect in particulate recording media // IEEE Transactions on Magnetics. — 1991. — Nov. — Vol. 27, no. 6. — P. 4972–4974.
- 119. Simulation of magnetic relaxation by a Monte Carlo technique with correlations and quantified time steps / R. Smirnov-Rueda, J. D. Hannay, O. Chubykalo et al. // IEEE Transactions on Magnetics. 1999. Sep. Vol. 35, no. 5. P. 3730–3732.
- 120. Micromagnetic modelling of thermal decay in interacting systems / O.A. Chubykalo, B. Lengsfield, B. Jones et al. // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 2000. — Vol. 221, no. 1. — P. 132 – 136. — Proceedings of the 3rd Euroconference on Magnetic Properties of Fine Particles and their Relevance to Materials Science. URL: http://www.sciencedirect. com/science/article/pii/S0304885300004364.
- 121. Nowak U., Chantrell R. W., Kennedy E. C. Monte Carlo Simulation with Time Step Quantification in Terms of Langevin Dynamics // Phys. Rev. Lett. — 2000. — Jan. — Vol. 84. — P. 163–166. — URL: https://link.aps.org/doi/ 10.1103/PhysRevLett.84.163.
- 122. Hinzke D., Nowak U. Magnetic relaxation in a classical spin chain // Phys. Rev. B. - 2000. - Mar. - Vol. 61. - P. 6734-6740. - URL: https://link. aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.61.6734.

- 123. Марковские процессы / Під ред. В.И. Тихонов, М.А. Миронов. Москва : Сов. радио, 1977. — С. 448.
- 124. Стохастические методы в естественных науках / Пер. с англ. / Під ред. К.В. Гардинер. — Москва : Мир, 1986. — С. 528.
- 125. Particle cluster configuration in magnetic fluids / R W Chantrell, A Bradbury, J Popplewell, S W Charles // Journal of Physics D: Applied Physics. — 1980. — jul. — Vol. 13, no. 7. — P. L119–L122. — URL: https://doi.org/ 10.1088\%2F0022-3727\%2F13\%2F7\%2F003.
- 126. Bradbury A., Menear S., Chantrell R.W. A Monte Carlo calculation of the magnetic properties of a ferrofluid containing interacting polydispersed particles // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 1986. — Vol. 54, no. Part 2. — P. 745 – 746. — URL: http://www.sciencedirect.com/science/ article/pii/0304885386902337.
- 127. Rovigatti Lorenzo, Russo John, Sciortino Francesco. No Evidence of Gas-Liquid Coexistence in Dipolar Hard Spheres // Phys. Rev. Lett. - 2011. -Nov. - Vol. 107. - P. 237801. - URL: https://link.aps.org/doi/10. 1103/PhysRevLett.107.237801.
- 128. Cluster-based Monte Carlo simulation of ferrofluids / S. W. Davis, W. Mc-Causland, H. C. McGahagan et al. // Phys. Rev. E. - 1999. - Feb. --Vol. 59. - P. 2424-2428. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/ PhysRevE.59.2424.
- 129. Aoshima Masayuki, Satoh Akira. Two-dimensional Monte Carlo simulations of a polydisperse colloidal dispersion composed of ferromagnetic particles for the case of no external magnetic field // Journal of Colloid and Interface Science. — 2004. — Vol. 280, no. 1. — P. 83 – 90. — URL: http://www.sciencedirect. com/science/article/pii/S0021979704006812.
- 130. Brinzanik R., Jensen P. J., Bennemann K. H. Magnetic relaxation and dipole-coupling-induced magnetization in nanostructured thin films during growth: A cluster Monte Carlo study // Phys. Rev. B. - 2003. - Nov. - Vol. 68. -P. 174414. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.68.

174414.

- 131. Rapaport D. C. The Art of Molecular Dynamics Simulation. Shaftesbury Road, Cambridge, CB2 8BS, United Kingdom : Cambridge University Press, 2004. — ISBN: 9780521825689. — URL: http://www.cambridge.org/ catalogue/catalogue.asp?isbn=9780521825689.
- 132. Haile J. M. Molecular Dynamics Simulation: Elementary Methods. Hoboken, New Jersey, USA : John Wiley & Sons, Inc., 1997. ISBN: 9780471184393. URL: http://eu.wiley.com/WileyCDA/WileyTitle/productCd-047118439X.html.
- 133. Durrant Jacob D., McCammon J. Andrew. Molecular dynamics simulations and drug discovery // BMC Biology. — 2011. — Vol. 9, no. 1. — P. 71. — URL: https://doi.org/10.1186/1741-7007-9-71.
- 134. Development and testing of a general amber force field / Junmei Wang, Romain M. Wolf, James W. Caldwell et al. // Journal of Computational Chemistry. — 2004. — Vol. 25, no. 9. — P. 1157–1174. https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/jcc.20035.
- 135. CHARMM: A program for macromolecular energy, minimization, and dynamics calculations / Bernard R. Brooks, Robert E. Bruccoleri, Barry D. Olafson et al. // Journal of Computational Chemistry. — 1983. — Vol. 4, no. 2. — P. 187–217. — https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/jcc.540040211.
- 136. The GROMOS software for biomolecular simulation: GROMOS05 / Markus Christen, Philippe H. Hunenberger, Dirk Bakowies et al. // Journal of Computational Chemistry. — 2005. — Vol. 26, no. 16. — P. 1719–1751. https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/jcc.20303.
- 137. On understanding proton transfer to the biocatalytic [Fe?Fe]H sub-cluster in [Fe?Fe]H2ases: QM/MM MD simulations / G. Hong, A.J. Cornish, E.L. Hegg, R. Pachter // Biochimica et Biophysica Acta (BBA) Bioenerget-ics. 2011. Vol. 1807, no. 5. P. 510 517. URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0005272811000235.
- 138. Design and Molecular dynamic Investigations of 7,8-Dihydroxyflavone

Derivatives as Potential Neuroprotective Agents Against Alpha-synuclein / Mohankumar Thangavel, Vivek Chandramohan, Lalithamba Haralur Shankaraiah et al. // Scientific Reports. — 2020. — Vol. 10, no. 1. — P. 599. — URL: https://doi.org/10.1038/s41598-020-57417-9.

- 139. Karmakar Sourav, Yadav Pankaj Kumar, Keshavamurthy Srihari. Stable chaos and delayed onset of statisticality in unimolecular dissociation reactions // Communications Chemistry. — 2020. — Vol. 3, no. 1. — P. 4. — URL: https://doi.org/10.1038/s42004-019-0252-y.
- 140. Sun Juan-Juan, Cheng Jun. Solid-to-liquid phase transitions of subnanometer clusters enhance chemical transformation // Nature Communications. - 2019. - Vol. 10, no. 1. - P. 5400. - URL: https://doi.org/10. 1038/s41467-019-13509-3.
- 141. Wang Zuowei, Holm Christian, Müller Hanns Walter. Molecular dynamics study on the equilibrium magnetization properties and structure of ferrofluids // Phys. Rev. E. - 2002. - Aug. - Vol. 66. - P. 021405. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.66.021405.
- Magnetic properties of polydisperse ferrofluids: A critical comparison between experiment, theory, and computer simulation / Alexey O. Ivanov, Sofia S. Kantorovich, Evgeniy N. Reznikov et al. // Phys. Rev. E. - 2007. – Jun. - Vol. 75. - P. 061405. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/ PhysRevE.75.061405.
- 143. Molecular dynamics study of the primary ferrofluid aggregate formation / B.M. Tanygin, V.F. Kovalenko, M.V. Petrychuk, S.A. Dzyan // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 2012. — Vol. 324, no. 23. — P. 4006 – 4010. — URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/ S0304885312005823.
- 144. Sreekumari Aparna, Ilg Patrick. Slow relaxation in structure-forming ferrofluids // Phys. Rev. E. - 2013. - Oct. - Vol. 88. - P. 042315. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.88.042315.
- 145. Sreekumari Aparna, Ilg Patrick. Anisotropy of magnetoviscous effect in

structure-forming ferrofluids // Phys. Rev. E. - 2015. - Jul. - Vol. 92. P. 012306. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.92.
012306.

- 146. Influence of dipolar interactions on the magnetic susceptibility spectra of ferrofluids / Julien O. Sindt, Philip J. Camp, Sofia S. Kantorovich et al. // Phys. Rev. E. - 2016. - Jun. - Vol. 93. - P. 063117. - URL: https://link. aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.93.063117.
- 147. Ivanov Alexey O., Zverev Vladimir S., Kantorovich Sofia S. Revealing the signature of dipolar interactions in dynamic spectra of polydisperse magnetic nanoparticles // Soft Matter. — 2016. — Vol. 12. — P. 3507–3513. — URL: http://dx.doi.org/10.1039/C5SM02679B.
- 148. Haase C., Nowak U. Role of dipole-dipole interactions for hyperthermia heating of magnetic nanoparticle ensembles // Phys. Rev. B. - 2012. -Jan. - Vol. 85. - P. 045435. - URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/ PhysRevB.85.045435.
- 149. Increase of magnetic hyperthermia efficiency due to dipolar interactions in low-anisotropy magnetic nanoparticles: Theoretical and experimental results / B. Mehdaoui, R. P. Tan, A. Meffre et al. // Phys. Rev. B. 2013. May. Vol. 87. P. 174419. URL: https://link.aps.org/doi/10. 1103/PhysRevB.87.174419.
- 150. Landi Gabriel T. Role of dipolar interaction in magnetic hyperthermia // Phys. Rev. B. - 2014. - Jan. - Vol. 89. - P. 014403. - URL: https://link. aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.89.014403.
- 151. Tan R. P., Carrey J., Respaud M. Magnetic hyperthermia properties of nanoparticles inside lysosomes using kinetic Monte Carlo simulations: Influence of key parameters and dipolar interactions, and evidence for strong spatial variation of heating power // Phys. Rev. B. 2014. Dec. Vol. 90. P. 214421. URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.90. 214421.
- 152. Jason Sanders Edward Kandrot. CUDA by Example: An Introduction

to General-Purpose GPU Programming. — San Francisco, USA : Addison-Wesley Longman Publishing Co., Inc., 2011. — ISBN: 978-0-13-138768-3. — URL: https://www.pearson.com/us/higher-education/program/ Sanders-CUDA-by-Example-An-Introduction-to-General-Purpose-GPU-Pro PGM200291.html.

- 153. GROMACS: High performance molecular simulations through multi-level parallelism from laptops to supercomputers / Mark James Abraham, Teemu Murtola, Roland Schulz et al. // SoftwareX. — 2015. — Vol. 1-2. — P. 19 - 25. — URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/ pii/S2352711015000059.
- 154. Mittal Sparsh, Vetter Jeffrey S. A Survey of CPU-GPU Heterogeneous Computing Techniques // ACM Comput. Surv. — 2015. — jul. — Vol. 47, no. 4. — 35 p. — URL: https://doi.org/10.1145/2788396.
- 155. Khajeh-Saeed Ali, Perot J. Blair. Direct numerical simulation of turbulence using GPU accelerated supercomputers // Journal of Computational Physics. — 2013. — Vol. 235. — P. 241 - 257. — URL: http://www.sciencedirect. com/science/article/pii/S0021999112006547.
- 156. Physis: An Implicitly Parallel Programming Model for Stencil Computations on Large-Scale GPU-Accelerated Supercomputers / Naoya Maruyama, Tatsuo Nomura, Kento Sato, Satoshi Matsuoka // Proceedings of 2011 International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis. SC '11. New York, NY, USA : Association for Computing Machinery, 2011. 12 p. URL: https://doi.org/10.1145/2063384.2063398.
- 157. Multicore Computing: Algorithms, Architectures, and Applications / Ed. by Rajasekaran, Lance Sanguthevar, Fiondella, Mohamed Ahmed, Reda A. Ammar. — Taylor and Francis Group, 2013. — ISBN: 9780429110856.
- 158. Krieger Elmar, Vriend Gert. New ways to boost molecular dynamics simulations // Journal of Computational Chemistry. — 2015. — Vol. 36, no. 13. — P. 996–1007. — https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/jcc.23899.
- 159. Strong scaling of general-purpose molecular dynamics simulations on GPUs /

Jens Glaser, Trung Dac Nguyen, Joshua A. Anderson et al. // Computer Physics Communications. — 2015. — Vol. 192. — P. 97 - 107. — URL: http://www. sciencedirect.com/science/article/pii/S0010465515000867.

- 160. Accelerating molecular modeling applications with graphics processors / John E. Stone, James C. Phillips, Peter L. Freddolino et al. // Journal of Computational Chemistry. — 2007. — Vol. 28, no. 16. — P. 2618–2640. https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/jcc.20829.
- 161. Barnes Josh, Hut Piet. A hierarchical O(N log N) force-calculation algorithm // Nature. — 1986. — Dec. — Vol. 324. — P. 446 - 449. — URL: https: //www.nature.com/nature/journal/v324/n6096/abs/324446a0.html.
- 162. Greengard L, Rokhlin V. A fast algorithm for particle simulations // Journal of Computational Physics. — 1987. — Vol. 73, no. 2. — P. 325 – 348. — URL: http: //www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021999187901409.
- 163. Rapidly driven nanoparticles: Mean first-passage times and relaxation of the magnetic moment / S. I. Denisov, K. Sakmann, P. Talkner, P. Hänggi // Phys. Rev. B. - 2007. - May. - Vol. 75. - P. 184432. - URL: https://link. aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.75.184432.
- 164. Newman J. J., Yarbrough R. B. Motions of a Magnetic Particle in a Viscous Medium // Journal of Applied Physics. — 1968. — Vol. 39, no. 12. — P. 5566– 5569. — https://doi.org/10.1063/1.1656014.
- 165. Kim Yung Sam, Hochstrasser Robin M. Applications of 2D IR Spectroscopy to Peptides, Proteins, and Hydrogen-Bond Dynamics // J. Phys. Chem. B. – 2009. – Oct. – Vol. 113. – P. 8231 – 8251. – URL: http://pubs.acs.org/ doi/abs/10.1021/jp8113978.
- 166. Dar M. Ibrahim, Shivashankar S. A. Single crystalline magnetite, maghemite, and hematite nanoparticles with rich coercivity // RSC Adv. — 2014. — Vol. 4. — P. 4105–4113. — URL: http://dx.doi.org/10.1039/C3RA45457F.
- 167. Denisov S. I., Lyutyy T. V., Hänggi P. Magnetization of Nanoparticle Systems in a Rotating Magnetic Field // Phys. Rev. Lett. – 2006. – Nov. – Vol. 97. – P. 227202. – URL: https://link.aps.org/doi/10.

1103/PhysRevLett.97.227202.

- 168. W. Horsthemke R. Lefever. Noise-Induced Transitions. Theory and Applications in Physics, Chemistry, and Biology. — Berlin : Springer-Verlag, 1984. — P. 322. — ISBN: 978-3-540-11359-1.
- 169. Risken H. The Fokker-Planck-Equation: Methods of Solution and Applications. 2nd ed. edition. — Berlin : Springer-Verlag, 1989. — 01. — Vol. 18. — URL: http: //dx.doi.org/10.1007/978-3-642-61544-3.
- 170. Role of the interpretation of stochastic calculus in systems with cross-correlated Gaussian white noises / Vicen ç Méndez, S. I. Denisov, Daniel Campos, Werner Horsthemke // Phys. Rev. E. 2014. Jul. Vol. 90. P. 012116. URL: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.90.012116.
- 171. Itô Kiyosi. Stochastic differential equations in a differentiable manifold // Nagoya Mathematical Journal. — 1950. — Vol. 1. — P. 35–47. — URL: https: //projecteuclid.org:443/euclid.nmj/1118764702.
- 172. Stratonovich R. A New Representation for Stochastic Integrals and Equations // SIAM Journal on Control. — 1966. — Vol. 4, no. 2. — P. 362–371. https://doi.org/10.1137/0304028.
- 173. Klimontovich Yu. L. Statistical Theory of Open Systems. Berlin : Springer, Dordrecht, 1995. URL: https://doi.org/10.1007/978-94-011-0175-2.
- 174. Denisov S. I., Vitrenko A. N., Horsthemke Werner. Nonequilibrium transitions induced by the cross-correlation of white noises // Phys. Rev. E. – 2003. – Oct. – Vol. 68. – P. 046132. – URL: https://link.aps.org/doi/ 10.1103/PhysRevE.68.046132.
- 175. Raible Martin, Engel Andreas. Langevin equation for the rotation of a magnetic particle // Applied Organometallic Chemistry. 2004. Vol. 18, no. 10. —
  P. 536–541. https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/aoc.757.
- 176. Energy dissipation in single-domain ferromagnetic nanoparticles: Dynamical approach / T. V. Lyutyy, S. I. Denisov, A. Yu. Peletskyi, C. Binns // Phys. Rev. B. 2015. Feb. Vol. 91. P. 054425. URL: http://link.aps.

org/doi/10.1103/PhysRevB.91.054425.

- 177. Switching properties of ferromagnetic nanoparticles driven by a circularly polarized magnetic field / T V Lyutyy, A Yu Polyakov, A V Rot-Serov, C Binns // Journal of Physics: Condensed Matter. 2009. Vol. 21, no. 39. P. 396002. URL: http://stacks.iop.org/0953-8984/21/i= 39/a=396002.
- 178. Burtscher Martin, Pingali Keshav. Chapter 6 An Efficient CUDA Implementation of the Tree-Based Barnes Hut n-Body Algorithm // GPU Computing Gems Emerald Edition / Ed. by Wen mei W. Hwu. — Boston : Morgan Kaufmann, 2011. — Applications of GPU Computing Series. — P. 75 – 92. — URL: http://www. sciencedirect.com/science/article/pii/B9780123849885000061.
- 179. Influence of the aggregation, concentration, and viscosity on the nanomagnetism of iron oxide nanoparticle colloids for magnetic hyperthermia / David Cabrera, Julio Camarero, Daniel Ortega, Francisco J. Teran // J. Nanopart. Res. — 2015. — Oct. — Vol. 17. — P. 121 – 126. — URL: https: //doi.org/10.1007/s11051-015-2921-9.
- 180. Mehta Rabindra D. Sports Ball Aerodynamics // Sport Aerodynamics /
  Ed. by Helge Norstrud. Vienna : Springer Vienna, 2008. P. 229– 331. — ISBN: 978-3-211-89297-8. — URL: https://doi.org/10.1007/ 978-3-211-89297-8\\_12.
- 181. Cross R. Physics of Baseball & Softball. Springer, New York, 2011. URL: http://dx.doi.org/10.1007/978-1-4419-8113-4.
- 182. Seifert Jost. A review of the Magnus effect in aeronautics // Progress in Aerospace Sciences. — 2012. — Vol. 55, no. Supplement C. — P. 17 - 45. — URL: http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/ S0376042112000656.
- 183. Forbes John C. Curveballs in protoplanetary discs the effect of the Magnus force on planet formation // Monthly Notices of the Royal Astronomical Society. — 2015. — Vol. 453, no. 2. — P. 1779–1792. — /oup/backfile/content\_public/journal/mnras/453/2/10.1093/mnras/stv1712/2/stv1712.pdf.

- 184. Yamaguchi Masaki S., Kimura Shigeo S. Effect of lift force on the aerodynamics of dust grains in the protoplanetary disk // Earth, Planets and Space. — 2014. — Oct. — Vol. 66, no. 1. — P. 132. — URL: https://doi.org/10.1186/ 1880-5981-66-132.
- 185. Thompson L. R., Stamp P. C. E. Effective Magnus Force on a Magnetic Vortex // Quantum Magnetism / Ed. by Bernard Barbara, Yosef Imry, G. Sawatzky, P. C. E. Stamp. Dordrecht : Springer Netherlands, 2008. P. 175–192. ISBN: 978-1-4020-8512-3. URL: https://doi.org/10.1007/978-1-4020-8512-3\\_13.
- 186. Sonin E.B. Dynamics of Quantised Vortices in Superfluids. Cambridge University Press, 2016. — ISBN: 9781107006683.
- 187. Borg Karl I., Söderholm Lars H., Essén Hanno. Force on a spinning sphere moving in a rarefied gas // Physics of Fluids. — 2003. — Vol. 15, no. 3. — P. 736– 741. — https://doi.org/10.1063/1.1541026.
- 188. Inverse Magnus effect on a rotating sphere: when and why / Jooha Kim, Haecheon Choi, Hyungmin Park, Jung Yul Yoo // Journal of Fluid Mechanics. — 2014. — Vol. 754.
- 189. Rubinow S. I., Keller Joseph B. The transverse force on a spinning sphere moving in a viscous fluid // Journal of Fluid Mechanics. — 1961. — Vol. 11, no. 3. — P. 447–459.
- 190. S. I. Denisov B. O. Pedchenko M. O. Pavlyuk. Unidirectional transport of ferromagnetic particles in a viscous liquid induced by the Magnus force // J. Nano- Electron. Phys. — 2016. — Vol. 8, no. 4. — P. 04087.
- 191. Denisov S. I., Pedchenko B. O. Drift of suspended ferromagnetic particles due to the Magnus effect // Journal of Applied Physics. — 2017. — Vol. 121, no. 4. — P. 043912. — https://doi.org/10.1063/1.4975031.
- 192. Exactly solvable model for drift of suspended ferromagnetic particles induced by the Magnus force / S.I. Denisov, B.O. Pedchenko, O.V. Kvasnina, E.S. Denisova // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. — 2017. — Vol. 443. — P. 89 – 95. — URL: http://www.sciencedirect.com/science/

article/pii/S0304885317316530.

- 193. P. Guimarães Alberto. Principles of Nanomagnetism. 2nd ed. edition. Berlin : Springer-Verlag, 2017. 01. ISBN: 978-3-319-59409-5.
- 194. Viscosity of liquid / D. S. Viswanath, T.K. Ghosh, D. H. L. Prasad et al. Dordrecht : Springer, 2007. 01. ISBN: 978-1-4020-5482-2.