

# Математические методы реставрации изображений в магнетизме наночастиц

**В. И. НИКОЛАЕВ**

*Московский государственный университет  
им. М. В. Ломоносова  
e-mail: vinikolaev@mail.ru*

**О. П. ТРЕТЬЯКОВА**

*Московский государственный университет  
им. М. В. Ломоносова  
e-mail: tretyakova\_op@mail.ru*

УДК 537.621+537.622+537.634.2+538.955

**Ключевые слова:** формализм «реставрация и повышение качества изображений», оперативная характеристика комплекса «прибор—ЭВМ», магнитометрия, фазовые переходы I и II рода, точка Кюри.

## Аннотация

Показано, что формализм «реставрация и повышение качества изображений» может быть эффективным средством математической корректировки исходных реальных условий опыта при решении задач магнитометрии. В качестве конкретного примера рассмотрена задача идентификации магнитных фазовых переходов, полевых и температурных, в системе наночастиц с логарифмически-нормальным их распределением по размерам.

## Abstract

*V. I. Nikolaev, O. P. Tretyakova, Mathematical methods for restoration of images in magnetism of nanoparticles, Fundamentalnaya i prikladnaya matematika, vol. 15 (2009), no. 6, pp. 99–117.*

It is shown that the formalism of “restoration and improving of images qualities” can be considered as an effective tool for mathematical correcting of initial experimental conditions in various cases of magnetometry. As a concrete example, the case of identification of magnetic phase transitions, field and temperature ones, in nanoparticle systems with the log-normal distribution of their sizes has been considered.

## 1. Введение

Трудно представить себе современную науку о свойствах материалов, в которой не использовался бы богатейший арсенал аналитических и вычислительных методов математики. Это в полной мере относится к тем разделам физики, главная задача которых — изыскание путей синтеза веществ с заданными свойствами с последующим их применением для практических нужд. Подтверждением

*Фундаментальная и прикладная математика*, 2009, том 15, № 6, с. 99–117.

© 2009 Центр новых информационных технологий МГУ,  
Издательский дом «Открытые системы»

может служить существование направлений научно-исследовательских работ, в которых в роли главных объектов исследований выступают системы наночастиц. Уже достигнутые к настоящему времени успехи в изучении свойств наночастиц и их применений столь очевидны, что в последние годы необычайную важность приобрела задача понимания механизмов формирования свойств систем наночастиц. На решение этой задачи уже нацелены, как известно, многие научные и промышленные центры [17–19]. С другой стороны, встречающиеся при этом трудности нередко таковы, что требуются совместные усилия специалистов различных областей науки и техники.

В качестве примера можно указать проблему магнитных фазовых переходов в системах наночастиц. Как это ни удивительно, до сих пор нет ясности в вопросе, каковы главные особенности магнитной фазовой диаграммы системы наночастиц. Более того, до сих пор нет детальных данных о характере температурных и полевых зависимостей магнитных и других связанных с ними характеристик свойств наночастиц в области точки Кюри.

Предварительный анализ этих зависимостей, проведённый в рамках достаточно реалистичной модели (имеется в виду модель Ланжевена, дополненная теорией молекулярного поля), показал, что температурный фазовый переход системы одинаковых наночастиц через точку Кюри в малом магнитном поле происходит весьма необычным образом: «мягче», чем фазовый переход второго рода. Обнаружить и идентифицировать такой переход средствами магнитометрии, однако, пока не представляется возможным. Дело в том, что разброс наночастиц по составу и размерам в реальных системах столь велик, что это становится непреодолимым препятствием на пути исследования особенностей магнитных фазовых переходов в таких системах.

В этой ситуации представляется целесообразной попытка «устранить» названные помехи средствами современной математики, используя методы решения некорректных задач [14–16]. В наших исследованиях такая попытка была предпринята на основе формализма «реставрация и повышение качества изображений», который описан в [10–13].

## 2. Магнитометрия как аналог спектроскопии

Обсуждение математических аспектов задач магнитометрии начнём с упоминания о методе аналогий. Этот метод позволяет, как известно, проводить широкие обобщения кажущихся на первый взгляд весьма непохожими друг на друга задач. Так обстоит дело и в том случае, когда сравниваются типичные задачи магнитометрии и, например, спектроскопии.

Первая из них так или иначе связана с изучением полевой (или температурной) зависимости намагниченности исследуемого вещества. Если это вещество представляет собой систему частиц, отличающихся друг от друга своим составом, формой и размерами, то при его изучении неизбежно возникнет необходимость учёта локальных неоднородностей физико-химических свойств.

В таких условиях вряд ли можно рассчитывать на получение достаточно надёжной информации о механизме формирования тех свойств, которые представляют практический интерес. Таким образом, необходимо устранить (или хотя бы существенно уменьшить) имеющиеся помехи такого рода. Основные ресурсы подобных улучшений условий опыта связаны, естественно, с совершенствованием технологии синтеза систем магнитных частиц. С формально-описательной точки зрения улучшение условий опыта соответствовало бы существенному уменьшению разброса параметров исследуемой системы.

Что же касается второй упомянутой задачи, она связана с улучшением спектра исследуемого вещества. Здесь встречаются помехи совершенно другого рода. Оставляя пока в стороне вопрос о роли разброса параметров, характеризующих строение того вещества, которое исследуется, обратим внимание на одну из главных характеристик используемого спектрометра: его разрешающую способность. В отличие от ситуации, встречающейся в магнитометрии, в этом втором случае улучшение условий опыта (а именно улучшение разрешения) связано с используемой аппаратурой, а не с исследуемым веществом.

Несмотря на столь разительное отличие этих двух задач, есть и глубокое сходство между ними. В обоих случаях весьма ощутима потребность уменьшить «разброс» — добиться возможности синтеза почти одинаковых частиц или уменьшить ширину линии источника излучения, являющегося составной частью спектрометра.

Ввиду этого обстоятельства можно констатировать, таким образом, что эти две задачи из области магнитометрии и спектроскопии действительно аналогичны друг другу. Развивая эту аналогию далее, сформулируем цель наших исследований. Она состоит, прежде всего, в том, чтобы, используя имеющийся опыт применения современных математических средств повышения разрешения в спектроскопии [6, 7], решить сходную задачу магнитометрии.

### 3. Формальное описание исходных экспериментальных данных

На опыте, в ходе проведения реального эксперимента, необходимо бывает в двух упомянутых случаях получить количественную информацию об исследуемом веществе в виде некоторой функции. В первом случае это может быть зависимость намагниченности исследуемого образца от напряжённости внешнего магнитного поля. Что же касается аналога, то это может быть, например, мёссбауэровский спектр [7]. С формально-описательной точки зрения исходные экспериментальные зависимости в этих двух случаях могут быть представлены в следующем виде:

$$\sigma(H) = \int_0^{\infty} \sigma_A(H, N) W_K(N) dN, \quad n(v) = \int_0^{\infty} n_A(u) W_K(v + u) du.$$

Здесь в опыте по магнетизму  $\sigma(H)$  — зависимость удельной намагниченности образца от напряжённости магнитного поля,  $N(\equiv \mu_0/\mu_B)$  — номинальный (т. е. при абсолютном нуле температур) магнитный момент наночастицы, выраженный в магнетонах Бора,  $W_K(N)$  — плотность вероятности для распределения частиц по размерам  $N$ ,  $\sigma_A(H, N)$  — зависимость удельной намагниченности для идеального случая, когда все наночастицы системы имеют одинаковый размер  $N$ .

Аналогично для случая мёссбауэровского спектра  $n(v)$  — его огибающая ( $n$  — число зарегистрированных  $\gamma$ -квантов в зависимости от доплеровской скорости источника излучения относительно поглотителя),  $W_K(u+v)$  — плотность вероятности для распределения  $\gamma$ -квантов на шкале доплеровских скоростей  $v$ , причём  $u$  — скорость, соответствующая энергии мёссбауэровских  $\gamma$ -квантов в потоке излучения, падающего на поглотитель,  $n_A(u)$  — огибающая для идеального случая, когда спектр исследуемого вещества не искажён уширением его компонент из-за разброса  $\gamma$ -квантов источника по энергиям в пределах спектральной линии источника.

Обратим внимание на два немаловажных обстоятельства. Во-первых, аналогичные друг другу идеальные зависимости,  $\sigma_A(H, N)$  и  $n_A(u)$ , помечены индексом «А». Это сделано по той причине, что в рамках формализма «реставрация и повышение качества изображений» идеальная зависимость соответствует оператору  $A$ , который играет роль идеального прибора. Во-вторых, величины  $H$  и  $v$  фигурируют в двух интегральных представлениях исследуемых зависимостей существенно по-разному. Напряжённость поля  $H$  связывается в первом случае с идеальной зависимостью  $\sigma_A$ , тогда как скорость  $v$  во втором случае оказалась включённой в описание искажающей функции  $W_K$ .

#### 4. Роль аппаратной функции в магнитометрии наночастиц

Ключевую роль в формализме «реставрация и повышение качества изображений» играет так называемая аппаратная функция [6]. По определению аппаратная функция — это функция  $W_K$ , описывающая основной источник искажений, вносимых измерительным комплексом «прибор—ЭВМ» в ходе регистрации исследуемой зависимости. Под исследуемой зависимостью в двух названных случаях имеются в виду соответственно функции  $\sigma_A(H, N)$  и  $n_A(u)$ .

Заметим ещё, что измерительный комплекс «прибор—ЭВМ» привносит в результат регистрации и вторую помеху — шум, который неизбежно сопутствует процессу измерений. Это обстоятельство, очевидно, должно быть учтено при корректной обработке результатов опыта с помощью выбранного математического метода.

Идеальному прибору соответствовала бы аппаратная функция в виде  $\delta$ -функции. Тогда отпала бы сама необходимость использования ЭВМ (и какого-либо

математического метода) для обработки экспериментальной зависимости. В случае мёссбауэровского эксперимента идеальная зависимость соответствовала бы нулевой естественной ширине источника излучения. В случае магнитометрии это была бы система наночастиц, у которых вовсе нет разброса по размерам. В рамках такой идеализации подразумевается, что шум при регистрации функций  $\sigma_A(H, N)$  и  $n_A(u)$  пренебрежимо мал.

Из приведённых рассуждений видно, что аппаратная функция выступает как помеха, которую необходимо устранить или сделать приемлемой. Приходится искать компромиссное решение этой задачи. Действительно, с одной стороны, ширину аппаратной функции можно уменьшить в результате обработки исходных экспериментальных данных практически до нуля. С другой стороны, неизбежна и расплата за такое улучшение результатов опыта [14]. Критерии, которые должны выполняться в случае корректной математической обработки, следует искать, как обычно, в обосновании самого используемого формализма.

## 5. Разновидности задач магнитометрии

Прежде чем переходить к краткому описанию основ формализма «реставрация и повышение качества изображений» [10–12], который был использован нами в исследованиях, укажем на три основные задачи магнитометрии, которые могут представлять очевидный интерес при формировании аппаратной функции с улучшенными характеристиками.

1. Две сходные задачи связаны с изучением магнитных фазовых переходов в системе наночастиц. Приходится констатировать, что вопрос о механизме магнитных фазовых переходов в системе наночастиц изучен весьма слабо. Отсутствие сколь-нибудь определённых данных о главных особенностях таких переходов как раз и можно объяснить разбросом размеров наночастиц, неустраняемым в реальном опыте. Налицо, таким образом, актуальность решения задачи реставрации, в которой объектом математической обработки были бы исходные экспериментальные зависимости намагничённости системы наночастиц от напряжённости магнитного поля и температуры — соответственно  $\sigma(H)$  и  $\sigma(T)$ . Заметим попутно, что зависимость  $\sigma(T)$  можно представить аналогично  $\sigma(H)$ , используя плотность вероятности  $W_K(N)$ :

$$\sigma(T) = \int_0^{\infty} \sigma_A(T, N) W_K(N) dN.$$

Результатом решения этих двух сходных задач должны быть зависимости намагничённости  $\sigma$  от магнитного поля  $H$  и температуры  $T$ , соответствующие улучшенным условиям регистрации.

2. Две другие сходные задачи связаны с поиском функций распределения, характеризующих строение и магнитные свойства реального объекта исследования, —  $f_N$  и  $f_{TC}$ . Первая из них,  $f_N$ , представляет несомненный интерес для

специалистов, занимающихся разработкой методов синтеза наночастиц с заданными свойствами. Вторая,  $f_{T_C}$  (здесь  $T_C$  — температура Кюри наночастицы размера  $N$ ), актуальна в задачах, в которых прикладные аспекты изучения свойств наносистем связаны главным образом с магнитными фазовыми переходами в наночастицах. Применение формализма «реставрация и повышение качества изображений» может привести к успеху в этом случае только при условии применения достаточно реалистичной модели описания магнитных свойств наночастиц различного размера. Как видим, принципиальное отличие этих двух задач от предыдущих состоит в том, что на сей раз математический формализм используется именно для реставрации, а не для повышения разрешения.

3. Ещё одна разновидность задач магнитометрии, доступных для формализма «реставрация и повышение качества изображений», связана с поиском параметров исследуемой системы частиц, характеризующих её как целое. С очевидностью напрашиваются опять-таки две сходные задачи: оценка среднего размера частиц  $\langle N \rangle$  и соответствующей ему температуры  $\langle T_C \rangle$ . Легко убедиться, что это именно те усреднённые характеристики исследуемой системы наночастиц, которые представляют интерес либо в связи с разработкой технологий их синтеза, либо в связи с практическим использованием их магнитных свойств.

Анализируя содержание трёх названных разновидностей задач, можно прийти к выводу о том, сколь важна априорная информация об объекте исследования. Именно от неё зависят как формальный результат решения задачи обработки исходных экспериментальных данных, так и интерпретация условий и границ его применимости.

На первых порах, когда применение формализма «реставрация и повышение качества изображений» в магнитометрии представляет собой поисковое направление, требуются наиболее простые задачи. Как ни парадоксально, наиболее привлекательной будет задача, в которой правильный результат реставрации наперёд известен. Именно это мы имеем в том случае, когда функция  $W_K(N)$  задана, а зависимости  $\sigma(H)$  и  $\sigma(T)$  однозначно задаются выбираемой моделью описания магнитных свойств системы наночастиц.

## 6. Особенности магнитных фазовых переходов в системах наночастиц

В качестве наперёд известного результат реставрации выберем тот, который даёт модель Ланжевена, модифицированная при помощи теории молекулярного поля [1]. Такой выбор продиктован следующими соображениями.

1. Благодаря использованию модели Ланжевена удаётся описать тепловые повороты магнитных моментов наночастиц в широкой области температур, включая область точки Кюри.
2. Теория молекулярного поля привносит в модель Ланжевена свойство наночастиц, которого не было в обычной ланжевенской модели: наличие точки Кюри.

3. Применение этой модифицированной модели для описания экспериментальных данных о температурно-полевых зависимостях дисперсионно-твердеющих сплавов на основе системы Fe—Co—Ni—Al подтвердило её пригодность [1].

Обсуждаемая разновидность модели Ланжевена даёт следующее описание температурно-полевых зависимостей намагниченности для ансамбля одинаковых суперпарамагнитных частиц [1]:

$$\frac{\sigma}{M_0} = \frac{M}{M_0} L \left( \frac{\mu_B N H}{k_B T} \frac{M}{M_0} \right), \quad (1)$$

$$\frac{\sigma}{M_0} = \frac{M}{M_0} \frac{k_B T_C}{\mu_B H} \left( \frac{1}{2} \frac{T}{T_C} \ln \frac{1 + \frac{M}{M_0}}{1 - \frac{M}{M_0}} - \frac{M}{M_0} \right). \quad (2)$$

Здесь  $L$  — функция Ланжевена,  $N$  ( $\equiv \mu_0/\mu_B$ ) — номинальный магнитный момент наночастицы, выраженный в магнетонах Бора,  $\sigma(T, H)$  — удельная намагниченность системы,  $M(T, H)$  — аналогичная величина, соответствующая «релаксирующему» магнитному моменту наночастицы,  $M_0$  ( $\equiv \mu_0/m$ ) — её удельный магнитный момент при абсолютном насыщении ( $m$  — масса частицы),  $T_C$  — температура Кюри,  $k_B$  — константа Больцмана.

Решение системы уравнений (1), (2) можно рассматривать, по существу, как концепцию магнитных фазовых переходов в системе суперпарамагнитных частиц. Прежде чем обсуждать её, предъявим к ней ряд очевидных требований.

Во-первых, ввиду необычности магнитного фазового перехода «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм», следует ожидать, что в области малых полей  $H$  зависимости  $\sigma(T, H)$  будут иметь ранее не встречавшиеся аномалии при переходе через точку Кюри. Интерес к области малых полей связан с тем, что точка Кюри магнетика — изолированная точка на фазовой  $HT$ -диаграмме. В такой ситуации намагниченность  $\sigma(T, H)$  выступает в роли весьма слабого отклика на внешнее воздействие в виде поля  $H$ .

Во-вторых, в ближней парамагнитной области температур следует ожидать проявления упорядочивающего влияния внешнего магнитного поля на ансамбль наночастиц. Элементарные представления о магнитных свойствах ланжевенского парамагнитного газа, применённые к случаю наличия у него точки Кюри, с очевидностью приводят к предсказанию существования полевого магнитного фазового перехода «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм». Этот фазовый переход можно трактовать как проявление конкуренции обменного взаимодействия и магнитного поля, с одной стороны, и теплового движения в системе наночастиц — с другой.

В-третьих, формальное описание магнитной фазовой диаграммы системы наночастиц в области точки Кюри, в том числе и с помощью уравнений (1), (2), должно соответствовать известным представлениям об особенностях фазовых переходов I и II рода [2]. В частности, ожидаемая «мягкость» перехода «суперпарамагнетизм—парамагнетизм» не должна противоречить требованию об отсутствии фазовых переходов III рода [3].

В-четвёртых, в этой системе уравнений должно содержаться количественное описание влияния разброса наночастиц по размеру  $N$  на зависимости  $\sigma(T, H)$ . Связанные с этим «ресурсы» представлены в уравнениях в виде зависимости от параметров  $N$  и  $T_C$ .

Путём численного решения системы уравнений (1), (2) нетрудно убедиться в том, что её действительно можно рассматривать как конкретное формальное воплощение названных особенностей магнитных свойств системы наночастиц в области температуры Кюри. Иллюстрацией к сказанному могут служить зависимости, представленные на рис. 1–3. Так, из рис. 1 видно, что магнитная фазовая диаграмма системы одинаковых суперпарамагнитных частиц содержит три физически различающиеся магнитные области: область суперпарамагнетизма (СПМ), область парамагнетизма (ПМ) и область индуцированного суперпарамагнетизма (ИСПМ). Граница между двумя последними областями — это, по существу, температурная зависимость для критического поля перехода «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм» [5]. Этот переход происходит как фазовый переход II рода (рис. 2 и 3). Хорошо видна и отличительная особенность температуры Кюри как изолированной точки на магнитной фазовой диаграмме: по мере приближения  $T$  к  $T_C$  из области высоких температур скачок  $\Delta\chi$  магнитной восприимчивости становится в пределе равным нулю. Судя по этим расчётным зависимостям, мы здесь имеем дело с необычным («мягким») магнитным фазовым переходом II рода.

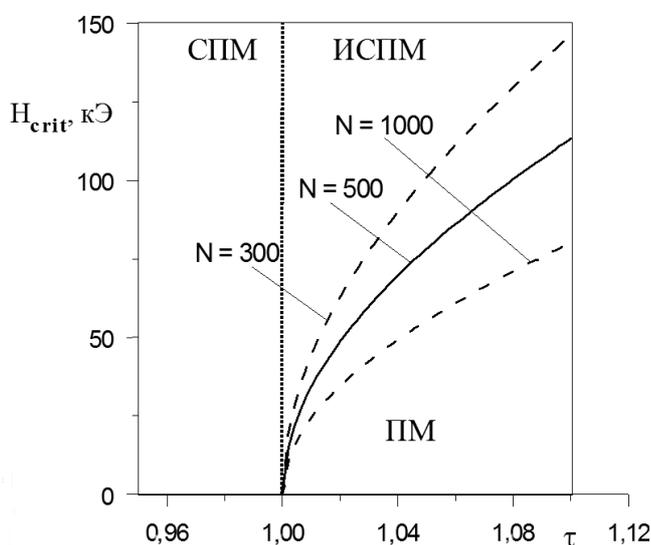


Рис. 1. Магнитная фазовая диаграмма для одинаковых суперпарамагнитных частиц (идеальный случай).  $T_C = 300 \text{ K}$

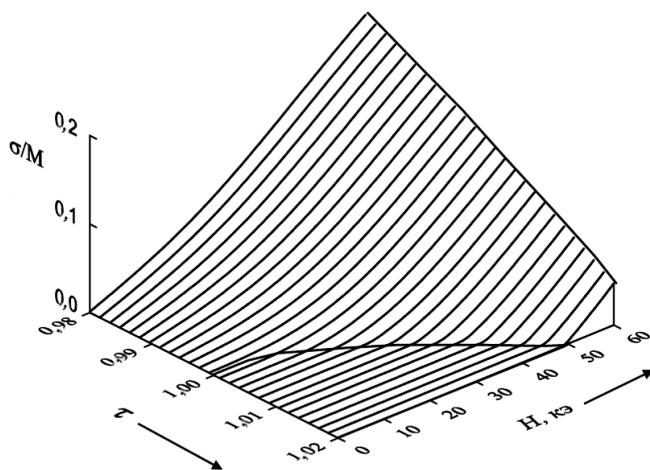


Рис. 2. Зависимость намагниченности наночастиц от приведённой температуры и внешнего магнитного поля в области выше точки Кюри (идеальный случай).  $N = 500$ ,  $T_C = 300 K$

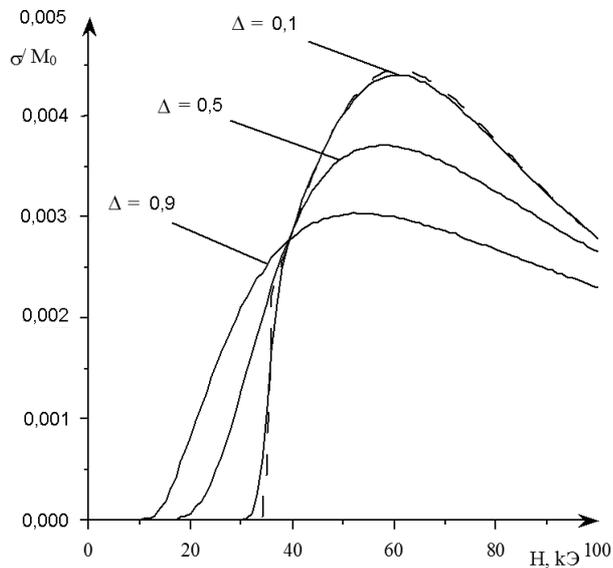


Рис. 3. «Размытые» зависимости намагниченности и восприимчивости наночастиц от внешнего магнитного поля для различных стандартных отклонений (штриховая линия соответствует идеальному случаю).  $N = 500$ ,  $T_C = 300 K$ ,  $\tau = 1,01$

Отметим ещё одно важное обстоятельство. Оба фазовых перехода — «суперпарамагнетизм—парамагнетизм» и «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм» — сильно «размываются» по мере уширения функции распределения частиц по размерам  $N$ , как это видно на примере полевого перехода (рис. 3). Анализ расчётных зависимостей вынуждает скептически отнестись к самой возможности идентификации обсуждаемых магнитных фазовых переходов в случае реальных систем наночастиц.

## 7. Формализм «реставрация и повышение качества изображений»

Перейдём теперь к описанию сути метода реставрации и повышения качества изображений.

Следуя [10—12] (и сохраняя основные обозначения), представим результаты измерений намагничённости  $\sigma(T, H)$  системы частиц в виде

$$\sigma = Kf + \nu.$$

Здесь  $K$  — линейный оператор, определяемый условиями опыта и свойствами исследуемой системы частиц,  $f$  — идеальная зависимость намагничённости от поля и температуры,  $\nu$  — шум, сопутствующий процессу измерений.

Заметим попутно, что условия опыта однозначно определяются выбором магнитометра в широком смысле трактовки этого «прибора»: в соответствии с [10—12] в число его составных частей входят не только реальный измеритель намагничённости и другие приборы, но и сама исследуемая система частиц как носитель механизма уширения функции распределения частиц по размерам. Здесь снова прослеживается аналогия с применением метода в спектроскопии: в случае исследования мёссбауэровского спектра, составной частью «прибора»  $K$  также является реальный образец — источник излучения, у которого ширина линии для испускаемых  $\gamma$ -квантов отлична от нуля. Идеальной зависимости  $f$  соответствует случай одинаковых частиц, распределение которых по размерам описывается  $\delta$ -функцией.

Введём некоторый линейный оператор  $R$ , который преобразует исходную экспериментальную зависимость  $\sigma(T, H)$  к виду

$$\sigma' \equiv R\sigma = RKf + R\nu. \quad (3)$$

Результат преобразования будем интерпретировать как новую зависимость намагничённости  $\sigma'(T, H)$ , полученную с помощью «магнитометра»  $K' \equiv RK$  при новом шуме  $R\nu' = R\nu$ . Это возможно, однако, лишь при условии, что оператор  $K'$  принадлежит к тому же классу «магнитных» операторов  $A$ , что и оператор  $K$ . Сразу же внесем определённость: будем считать оператор  $K'$  принадлежащим к классу  $A$ , если ему соответствует распределение частиц по размерам такого же вида, как и в случае «прибора»  $K$ .

Попытку реставрации идеальной зависимости  $f$  можно считать успешной, если удаётся отыскать такой оператор  $R$ , которому соответствует оператор  $K'$  с более узкой, чем для оператора  $K$ , функцией распределения по размерам. Уменьшение ширины функции распределения для операторов из класса  $A$  может привести, однако, к такому возрастанию шума, что это лишит смысла саму попытку повышения разрешения. В арсенале средств метода есть, однако, ресурсы для того, чтобы обойти эту трудность: с целью снижения интенсивности шума в результате преобразования исходной экспериментальной зависимости  $\sigma(T, H)$  оператор  $K'$  можно искать не среди операторов класса  $A$ , а среди «почти тождественных» им. Такой подход к решению задачи повышения разрешения приводит к необходимости поиска оператора  $K'$ , ближайшего к «магнитному»  $K$ , которому соответствует наперёд задаваемая ширина функции распределения частиц по размерам (естественно, меньшая, чем в случае оператора  $K$ ). При этом форма функции распределения, соответствующая оператору  $K'$ , будет несколько отличаться от формы функции распределения, выбранной для класса  $A$ .

Следуя этой идее, можно несколько видоизменить способ представления намагниченности (3), вводя упомянутую пару линейных операторов  $K' (\equiv RK)$  и  $A$ :

$$\sigma' = Af + (RK - A)f + R\nu. \quad (4)$$

При этом трактовка обсуждаемых зависимостей также будет несколько иной:  $\sigma'$  — это намагниченность, которая включает в себя три вклада. Первый вклад  $Af$  представляет собой результат измерений в идеальных условиях, второй — ложный сигнал как неизбежная расплата за повышение разрешения,  $\nu$  — шум, сопутствующий процессу измерений. Величина ложного сигнала зависит от операторной невязки для  $RK - A$ , которая характеризует степень «отклонения» оператора  $K' (\equiv RK)$  от  $A$ .

Мы подошли к математической формулировке задачи реставрации. В соответствии с формализмом метода [10–12] будем характеризовать упомянутую невязку и интенсивность шума соответственно (положительными) числами  $G \equiv \|RK - A\|^2$  и  $H \equiv \|\overline{R\nu}\|^2$ . Если потребовать, чтобы интенсивность шума не превышала допустимого уровня  $\varepsilon$ , а ширина функции распределения частиц по размерам была не больше задаваемой величины  $\Delta$ , в формальной постановке задача реставрации сводится к отысканию такой пары операторов  $(R_{\varepsilon, \Delta}; A_{\varepsilon, \Delta})$ , которая удовлетворяла бы условию

$$\min\{\|RK - A\|^2, \|\overline{R\nu}\|^2 \leq \varepsilon, A \in \{A\}, \Delta_A \leq \delta\} = \|R_{\varepsilon, \delta}K - A_{\varepsilon, \delta}\|^2 \equiv \rho_{\varepsilon, \delta}. \quad (5)$$

Здесь  $\rho_{\varepsilon, \delta}$  — точность совпадения «прибора», которому соответствует оператор  $R_{\varepsilon, \delta}K$  с идеальным «прибором»  $A_{\varepsilon, \delta}$ . При выбранных в (5) ограничениях для разрешения и шума оператор  $R_{\varepsilon, \delta}K$  будет ближайшим к оператору  $A_{\varepsilon, \delta}$ .

Согласно [10–12] решение задачи (5) может быть представлено в аналитическом виде:

$$R_{\varepsilon,\delta}(\omega) = A_{\varepsilon,\delta}(K^0 K + \omega I)^{-1} K^0, \quad (6)$$

$$G_{\varepsilon,\delta}(\omega) = A_{\varepsilon,\delta} \frac{\omega^2 I}{(K^0 K + \omega I)^2} A_{\varepsilon,\delta}^0, \quad (7)$$

$$H(\omega) = \text{tr} A_{\varepsilon,\delta} \frac{K^0 K}{(K^0 K + \omega I)^2} A_{\varepsilon,\delta}^0 = \varepsilon. \quad (8)$$

Здесь  $K^0$  и  $A^0$  — операторы, сопряжённые соответственно с  $K$  и  $A$ ,  $I$  — единичный оператор,  $\omega$  — параметр задачи, определяемый условием (8) и характеризующий близость оператора  $R_{\varepsilon,\Delta}$  к «магнитному»  $A_{\varepsilon,\Delta}$ .

При решении задачи реставрации удобно воспользоваться «законом сохранения»

$$\omega \frac{\partial H(\omega)}{\partial \omega} + \frac{\partial G_{\varepsilon,\Delta}}{\partial \omega} = 0,$$

который связывает интенсивность шума  $H(\omega)$  и операторную невязку  $G_{\varepsilon,\Delta}$ . Это равенство может служить также напоминанием о том, что контроль за уровнем шума обеспечивается возможностью выбрать отличную от нуля величину невязки  $G_{\varepsilon,\Delta}$  (её определяет параметр задачи  $\omega$ ). Действительно,  $\partial H(\omega)/\partial \omega < 0$ , поскольку  $\partial G_{\varepsilon,\Delta}(\omega)/\partial \omega > 0$ .

## 8. Оперативная характеристика комплекса «магнитометр—ЭВМ»

Рассматриваемый формализм «реставрация и повышение качества изображений» допускает очень удобную наглядную трактовку понятия качества. Это понятие можно сделать количественной характеристикой «магнитометра», если за меру качества принять ширину функции распределения частиц по размерам  $\Delta_A$ . Вот основные удобства такой трактовки: во-первых,  $\Delta_A$  — величина положительная; во-вторых, «магнитометру» с более высоким разрешением соответствует меньшая величина  $\Delta_A$ ; в-третьих, идеальному «магнитометру» соответствует предел при  $\Delta_A \rightarrow 0$ .

Правда, качество  $\Delta_A$  не входит в явном виде в соотношения (6)–(8). Поскольку, однако, имеется однозначное соответствие между  $\Delta_A$  и  $A$ , качеством  $\Delta_A$  определяется и взаимосвязь  $G$  и  $H$ . Анализируя совокупность этих трёх величин —  $G$ ,  $H$ ,  $\Delta_A$ , — можно оценить целесообразность решения задачи реставрации при выбираемых значениях  $\Delta_A$  и  $\varepsilon$ . Совокупность величин  $G$ ,  $H$  и  $\Delta_A$  можно рассматривать как «паспорт» комплекса «магнитометр—ЭВМ».

Множество взаимосвязанных величин  $\{G, H, \Delta_A\}$  — это по определению оперативная характеристика комплекса [1]. На рис. 4 показана оперативная характеристика комплекса «магнитометр—ЭВМ» для того случая, когда класс «магнитных операторов»  $A$  соответствует логарифмически-нормальному распределению частиц по размерам  $N$  (рис. 5). На рис. 4 величина  $Q = \Delta_A/\Delta_K$  представляет собой качество комплекса в единицах  $\Delta_K$ . «Паспорт» такого вида

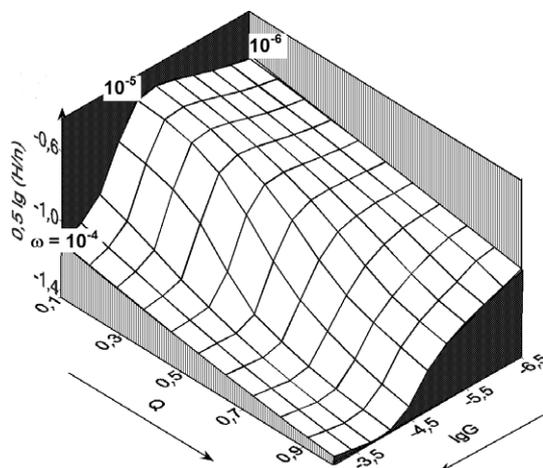


Рис. 4. Оперативная характеристика комплекса «магнитометр—ЭВМ».  $N = 500, T_C = 300 K, \Delta_K = 0,5$

использовался нами для решения задачи реставрации при исследовании температурных и полевых магнитных фазовых переходов в системах с «разбросом» частиц по размерам (см. об этом далее).

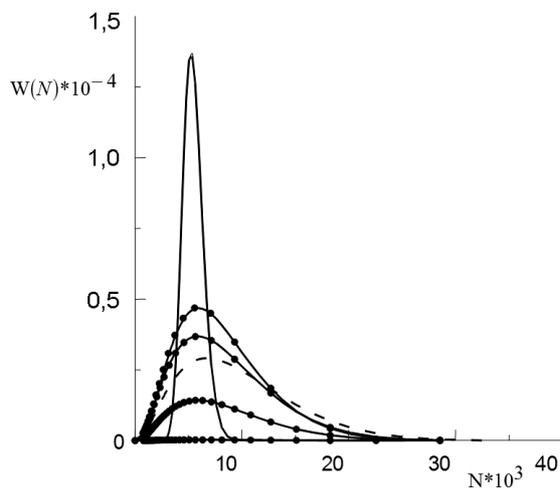


Рис. 5. Аппаратные функции «магнитометров»:  $K$  (штриховая линия),  $A$  (сплошная линия) и  $RK$  (ломаные линии) при  $Q = 0,2$

Перейдём теперь к изложению результатов применения формализма «реставрация и повышение качества изображений» в магнетизме наночастиц. Ниже рассматриваются результаты решения двух конкретных задач:

- 1) реставрации магнитных характеристик полевого перехода «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм» в системе наночастиц с логарифмически-нормальным распределением по размерам;

- 2) реставрации магнитной фазовой диаграммы для такой системы.

В обоих случаях решение задачи мы искали на пути компромисса в выборе условий обработки исходных «экспериментальных» зависимостей, который обеспечивается оперативной характеристикой комплекса. Окончательный выбор условий обработки проводился с учётом физического содержания решаемой задачи.

## **9. Реставрация магнитных характеристик фазового перехода «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм»**

Эта задача представляет интерес прежде всего в связи с проблемой идентификации магнитного фазового перехода «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм» на основании данных о полевых зависимостях намагниченности  $\sigma$  и восприимчивости  $\chi$  для системы наночастиц со значительным их «разбросом» по размерам [8]. Её решение позволило бы устранить неопределённость в принадлежности магнитного превращения «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм» к тем или иным фазовым переходам в рамках общепринятой их классификации.

На рис. 6 и 7 показаны результаты применения обсуждаемого формализма в условиях, когда исходные «экспериментальные» зависимости  $\sigma(H)$  и  $\chi(H)$  вблизи точек Кюри для большей части наночастиц сильно «размыты» из-за разброса частиц по размерам. Как видно из рисунков, исходные зависимости (они показаны в виде семейств «экспериментальных» точек) столь далеки от идеала, что идентификация полевого фазового перехода не представляется возможной.

Применение обсуждаемого формализма реставрации радикально улучшает условия идентификации типа полевого магнитного фазового перехода в системе наночастиц. В этом нетрудно убедиться, сравнивая результаты реставрации (сплошные линии на обоих рисунках) с исходными «экспериментальными» данными. В соответствии с особенностями применённого метода результат реставрации этих двух зависимостей,  $\sigma(H)/M_0$  и  $\chi(H)/M_0$ , содержит так называемые «ложный сигнал» и «новый шум». Видно, что уровень шума можно сделать вполне приемлемым: он практически незаметен. Что же касается роли ложного сигнала, то для оценки его влияния можно воспользоваться сравнением полученных результатов реставрации с соответствующими «идеальными» зависимостями  $\sigma(H)/M_0$  и  $\chi(H)/M_0$ . Действительно, правильный результат решения задачи нам наперёд известен: он содержится в решении системы уравнений

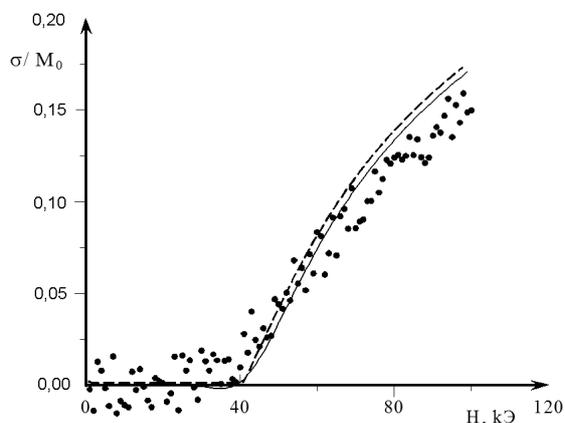


Рис. 6. Результат реставрации полевой зависимости намагниченности наночастиц (сплошная линия) при температуре выше их точки Кюри на примере частиц Fe—С, средний диаметр частиц 3 нм,  $\Delta = 0,4$ , уровень шума 5 %. Идеальному случаю соответствует штриховая линия. «Экспериментальная» зависимость отображена точками

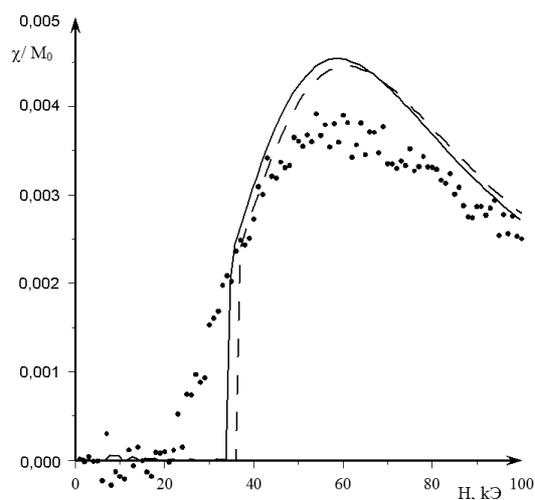


Рис. 7. Результат реставрации полевой магнитной восприимчивости наночастиц (сплошная линия) при температуре выше их точки Кюри на примере частиц Fe, средний диаметр частиц 3 нм,  $\Delta = 0,5$ , уровень шума 5 %. Идеальному случаю соответствует штриховая линия. «Экспериментальная» зависимость отображена точками

(1), (2). В терминах формализма «реставрация и повышение качества изображений» это решение можно рассматривать как зависимости  $\sigma(H)/M_0$ , не содержащие ни ложного сигнала, ни какого бы то ни было шума. Тот факт, что результаты реставрации практически не отличаются от «идеальных» зависимо-

стей (см. рис. 6 и 7), даёт основание надеяться на успешное применение метода и в тех практически важных случаях, когда идеальная версия для исследуемых зависимостей наперёд не известна.

Возвращаясь к физической стороне вопроса о полевом фазовом переходе, можно констатировать: он происходит, судя по результатам реставрации, как фазовый переход второго рода в классификации Эренфеста. Требования этой классификации, как известно, таковы, что при фазовом переходе второго рода первые производные потенциала Гиббса по его естественным переменным непрерывны, а вторые терпят разрыв. Именно это мы и имеем в нашем случае. В роли первой и второй производных выступают соответственно намагниченность  $\sigma$  и магнитная восприимчивость  $\chi$ , причём  $\sigma$  меняется с изменением поля  $H$  при температурах несколько выше точки Кюри непрерывным образом (см. рис. 6), тогда как  $\chi$  терпит разрыв (см. рис. 7).

## 10. Магнитная фазовая диаграмма суперпарамагнетика

Как уже отмечалось (см. раздел 6), полевой фазовый переход «индуцированный суперпарамагнетизм — парамагнетизм» в системе наночастиц можно рассматривать как результат конкуренции упорядочивающего влияния обменного взаимодействия и магнитного поля, с одной стороны, и разупорядочивающего влияния теплового движения — с другой. В такой ситуации естественно ожидать, что критическое поле для этого перехода  $H_{\text{crit}}$  будет возрастать по мере роста температуры начиная с нулевого значения при  $T = T_C$ . В рамках используемой здесь модифицированной модели Ланжевена зависимость  $H_{\text{crit}}(T)$  можно выразить аналитически. Для этого достаточно разложить по малому параметру  $M/M_0$  правые части уравнений (1), (2). В итоге будем иметь

$$H_{\text{crit}} = \left( \frac{k_B T_C}{\mu_B} \right) \sqrt{\frac{3\tau(\tau - 1)}{N}}.$$

Зависимость  $H_{\text{crit}}(T)$  разбивает магнитную фазовую  $HT$ -диаграмму на три области: суперпарамагнетизма (СПМ) при  $T < T_C$ , парамагнетизма (ПМ) при  $T > T_C$  и  $H < H_{\text{crit}}$  и индуцированного суперпарамагнетизма (ИСПМ) при  $T > T_C$  и  $H > H_{\text{crit}}$  [1].

Задачу реставрации зависимостей  $\sigma(H)$  и  $\chi(H)$  в области температур  $T > T_C$  можно обобщить, таким образом, на случай реставрации магнитной фазовой диаграммы системы наночастиц. Эта вторая задача связана, фактически, с получением данных о зависимости  $H_{\text{crit}}(T)$ . Для её решения необходимо выбрать достаточно обоснованную форму аппаратной функции, описывающей распределение частиц по размерам. Это может быть (как и в случае первой задачи) логарифмически-нормальная функция [4]. В качестве исходных экспериментальных зависимостей при этом могут выступать температурно-полевые зависимости

намагниченности исследуемой реальной системы наночастиц, полученные с помощью реального магнитометра.

Что же касается нашей попытки реставрации магнитной фазовой диаграммы [9], мы сохранили в ней прежнюю логику действий: исходные «экспериментальные» зависимости были получены на основе уравнений (1), (2). Это и дало нам возможность иметь идеальный результат ещё до применения обсуждаемого формализма (рис. 8).

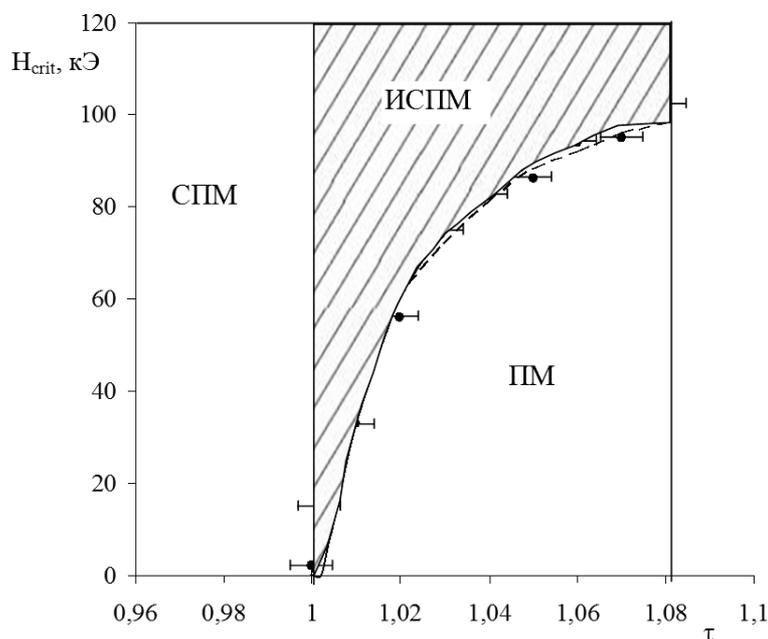


Рис. 8. Результат реставрации магнитной фазовой диаграммы для системы суперпарамагнитных частиц с логарифмически-нормальным распределением по размерам (сплошная линия, соответствующая результатам реставрации значений критического магнитного поля при переходе «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм»). Штриховая линия соответствует идеальному случаю с  $N_0 = 500$

## 11. Заключение

Итак, мы видим, что формализм «реставрация и повышение качества изображений» можно рассматривать как эффективное дополнение к традиционным методам повышения точности измерения величин в физическом эксперименте. В этом нас убеждают изложенные здесь результаты моделирования условий опыта на примере одной из важнейших задач магнитометрии — задачи изучения температурных и полевых магнитных фазовых переходов в системах наночастиц с «размытым» их распределением по размерам. В такой трактовке целей и

способов исследования, которая использовалась выше, современные математические средства обработки исходных реальных экспериментальных данных могут, при благоприятных обстоятельствах, избавить от необходимости создания высокоточных приборов и технологий синтеза материалов, столь характерной для индустрии наносистем. Немаловажным представляется и то, что математические средства обработки результатов эксперимента дают возможность трактовать с единых позиций две совершенно различные по своему физическому содержанию области исследования: спектроскопию и магнитометрию.

## Литература

- [1] Авраамов Ю. С., Белова В. М., Николаев В. И., Стучебников В. М. Температурная зависимость намагниченности суперпарамагнетика // Физика твёрдого тела. — 1981. — Т. 16, № 10. — С. 3180—3181.
- [2] Базаров И. П. Термодинамика. — М.: Высшая школа, 1991.
- [3] Базаров И. П., Бондаренко В. В. О невозможности фазовых переходов третьего и более высокого рода // Журн. физ. химии. — 1996. — Т. 70, № 7. — С. 1198—1200.
- [4] Колмогоров А. Н. О логарифмически-нормальном законе распределения размеров частиц при дроблении // ДАН СССР. — 1941. — Т. 31, № 2. — С. 99—101.
- [5] Николаев В. И., Бушина Т. А. О парапроцессе суперпарамагнитного типа // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 3, Физика, астрономия. — 1998. — № 2. — С. 48—51.
- [6] Николаев В. И., Пытьев Ю. П., Русаков В. С., Свешников А. Г., Терентьев Е. Н. Новый принцип организации комплекса «спектрометр—ЭВМ» в мёссбауэровской спектроскопии // ДАН СССР. — 1981. — Т. 260. — С. 848—852.
- [7] Николаев В. И., Русаков В. С. Мёссбауэровские исследования ферритов. — М.: Изд-во Моск. ун-та, 1985.
- [8] Николаев В. И., Третьякова О. П. Метод редукции измерения в задаче обнаружения фазового перехода «парамагнетизм — индуцированный суперпарамагнетизм» // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 3, Физика, астрономия. — 2006. — № 1. — С. 73—75.
- [9] Николаев В. И., Третьякова О. П. О реставрации магнитной фазовой диаграммы суперпарамагнетика // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 3, Физика, астрономия. — 2008. — № 1. — С. 75—78.
- [10] Пытьев Ю. П. Задачи реставрации изображений // ДАН СССР. — 1979. — Т. 245. — С. 42—46.
- [11] Пытьев Ю. П. Задача улучшения качества изображений // ДАН СССР. — 1979. — Т. 245. — С. 315—319.
- [12] Пытьев Ю. П. Подавление ложных сигналов в задаче повышения разрешения // ДАН СССР. — 1980. — Т. 255. — С. 540—544.
- [13] Пытьев Ю. П. Методы анализа и интерпретации эксперимента. — М.: Изд-во Моск. ун-та, 1990.
- [14] Пытьев Ю. П. Методы математического моделирования измерительно-вычислительных систем. — М.: Физматлит, 2004.
- [15] Тихонов А. Н. О решении некорректно поставленных задач и методе регуляризации // ДАН СССР. — 1963. — Т. 151, № 3. — С. 501—504.

- [16] Тихонов А. Н., Арсенин В. Я. Методы решения некорректных задач. — М.: Наука, 1979.
- [17] Brechignac C., Hondy P., Lahmani M. Nanomaterial in Nanochemistry. — Berlin: Springer, 2008.
- [18] Cao G. Nanostructures and Nanomaterials: Synthesis, Properties and Applications. — Imperial College Press, 2004.
- [19] Gerritzen G., Li-Chin Huang, Killpack K., Mircheva M., Conti J. A Review of Current Practices in the Nanotechnology Industry. — St. Univ. of California, 2006.

