

Определение реальной структуры искусственных и природных опалов на основе трехмерных реконструкций обратного пространства

А. А. Елисеев, Д. Ф. Горожанкин, К. С. Напольский¹⁾, А. В. Петухов⁺, Н. А. Саполетова, А. В. Васильева*, Н. А. Григорьева[∇], А. А. Мистонов[∇], Д. В. Белов⁺, В. Г. Бауман²⁾□, К. О. Квашнина[△], Д. Ю. Чернышов[◊], А. А. Босак[△], С. В. Григорьев*

Факультет наук о материалах, МГУ им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

⁺Debye Institute for Nanomaterials, University of Utrecht, 3584 CH Utrecht, The Netherlands

* Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова РАН, 188308 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

[∇] Санкт-Петербургский государственный университет, 198504 Санкт-Петербург, Россия

□ Delft University of Technology, 2629 JB Delft, The Netherlands

[△] European Synchrotron Radiation Facility, BP220, F-38043 Grenoble Cedex, France

[◊] Swiss-Norwegian Beam Lines at the European Synchrotron Radiation Facility, BP220, F-38043 Grenoble Cedex, France

Поступила в редакцию 25 июня 2009 г.

По набору картин малоугловой дифракции рентгеновского излучения восстановлено распределение интенсивности рассеяния в обратном пространстве для природного и искусственного опалов. Полученные трехмерные карты интенсивности использовали для анализа дефектной структуры опалов. Структура синтетических опалов может быть удовлетворительно описана в рамках вероятностной модели Вильсона с преобладанием слоев в ГЦК окружении. Дифракционные картины, наблюдаемые для природного опала, подтверждают наличие неравнозаселенных доменов ГЦК достаточной протяженности.

PACS: 61.05.Cf, 61.72.Dd, 64.75.Yz

Введение. Опал – один из широко известных ювелирных камней, привлекающий к себе внимание переливами красок и удивительными цветовыми переходами. Его название происходит от греческого “οπάλλιος” – драгоценный камень [1]. Считается, что опал был известен еще в 250 г. до н.э., однако его структура была установлена с помощью дифракции света [2–4] и электронной микроскопии [5] не так уж давно – менее 50 лет назад. Последние два десятилетия наблюдается новый всплеск интереса к исследованию опалов и к методам их искусственного формирования. Это связано с появлением и развитием фотоники – области науки, изучающей возможности управления световыми потоками. Одним из перспективных для фотоники классов материалов являются фотонные кристаллы (ФК); их структура характеризуется строго периодическим изменением коэффициента преломления на масштабах, сопоставимых с длиной волны электромагнитного излучения [6, 7]. Основным свойством ФК является наличие в

спектрах их собственных электромагнитных состояний фотонных запрещенных зон, в пределах которых распространение электромагнитного излучения подавлено во всех или в некоторых кристаллографических направлениях [8]. Часто фотонные кристаллы рассматривают как оптические аналоги полупроводниковых материалов. С практической точки зрения, ФК интересны для создания оптических фильтров, сверхбыстрых переключателей, усилителей и высокоэффективных излучателей.

Природные опалы образуются в недрах Земли из субмикронных близких по размеру сферических частиц оксида кремния в условиях невысоких температур и давлений под действием гравитации. Искусственные опалы, в качестве которых выступают коллоидные кристаллы, наиболее часто получают методами самосборки субмикронных сферических частиц оксида кремния, полистирола или полиметилметакрилата под действием гравитационных, капиллярных, конвекционных и электростатических сил [9–12].

Коллоидные кристаллы, состоящие из сферических частиц, удобно рассматривать в терминах плот-

¹⁾ e-mail: napolsky@inorg.chem.msu.ru

²⁾ W. G. Bouwman.

нейших шаровых упаковок, составленных из гексагональных плотноупакованных слоев, каждый из которых может занимать одну из трех неравнозначных позиций А, В или С. Структура коллоидного кристалла определяется последовательностью укладки таких слоев. Трехслойная шаровая упаковка АВСАВС... (или АСВАСВ...) соответствует гранцентрированной кубической (ГЦК) решетке. Последовательность АВАВАВ... отвечает двухслойной гексагональной плотнейшей упаковке. При произвольном чередовании слоев говорят об образовании случайной гексагональной плотнейшей упаковки (СГПУ).

При формировании пленочных образцов искусственных опалов плотноупакованные гексагональные слои из микросфер располагаются параллельно подложке. Принято считать, что метод вертикального осаждения часто приводит к образованию фотонных кристаллов с ГЦК структурой [13, 14], хотя информация об их дефектности остается неполной. Настоящее исследование призвано ответить на вопрос, в чем заключаются различия и в чем сходство структуры искусственных и природных опалов. Получение такой информации является необходимым шагом как на пути рационального синтеза фотонных кристаллов, так и для реконструкции геофизических процессов, сопровождавших формирование природных опалов.

Наиболее широко для исследования материалов, обладающих упорядочением на нано- и субмикронном уровне, применяются методы растровой электронной и сканирующей зондовой [12, 13, 15], а также конфокальной [13, 16, 17] микроскопии. Кроме очевидных достоинств, к которым можно отнести доступность и высокое разрешение, данные методы обладают и достаточно серьезным недостатком: локальностью и, следовательно, весьма ограниченной статистикой получаемой информации. На качественном уровне структуру фотонных кристаллов можно изучать методами оптической спектроскопии. В ряде работ [18, 19] отмечается, что при увеличении количества дефектов в коллоидном кристалле с ГЦК структурой характерный минимум на спектрах пропускания или максимум на спектрах отражения, соответствующий стоп-зоне вдоль направления $\langle 111 \rangle$, становится менее выраженным и более широким. Исследование дальнего порядка пространственно-упорядоченных материалов на количественном уровне возможно лишь с применением дифракционных методов, которые предоставляют информацию, усредненную по объему образца [20, 21]. В рамках настоящей работы было выполнено комплексное исследование природного австралийского опала и пленочного образца синтетическо-

го фотонного кристалла, состоящего из монодисперсных микросфер полистирола, с применением техники малоугловой дифракции рентгеновского излучения. Для определения реальной структуры исследуемых объектов для малоугловых дифракционных экспериментов была проведена трехмерная реконструкция обратного пространства. Используемый подход универсален и может быть применен для количественного анализа структуры широкого круга пространственно-упорядоченных материалов. Методология, связанная с трехмерной реконструкцией обратного пространства по данным дифракции для изучения дефектной структуры кристаллических материалов, хорошо освещена в работах [22, 23].

Экспериментальная часть. В качестве природного фотонного кристалла нами был использован коммерчески доступный австралийский опал. Образец имел форму пластины с площадью поверхности $\sim 5 \times 7$ мм и толщиной ~ 200 мкм.

Для формирования искусственного опала была использована методика вертикального осаждения [10, 11, 13]. Первым шагом при получении фотонных кристаллов данным методом является синтез монодисперсных микросфер. Их размер определяет периодичность структуры коллоидного кристалла и, как следствие, положение фотонной запрещенной зоны в энергетическом спектре, в то время как монодисперсность частиц является одним из ключевых факторов, определяющих возможность самосборки частиц в упорядоченные массивы. Суспензию монодисперсных микросфер получали полимеризацией стирола в присутствии персульфата калия как инициатора [24]. Непосредственно перед проведением синтеза стирол был очищен от ингибитора полимеризации вакуумной перегонкой. Реакционную смесь, содержащую стирол, персульфат калия и дистиллированную воду в мольном соотношении $1 \text{ C}_8\text{H}_8 : 0.003 \text{ K}_2\text{S}_2\text{O}_8 : 58 \text{ H}_2\text{O}$, термостатировали в течение 24 ч при температуре 70°C при интенсивном перемешивании на магнитной мешалке. Затем суспензию центрифугировали, а полученный осадок белого цвета диспергировали в дистиллированной воде под действием ультразвука. Согласно данным динамического светорассеяния и растровой электронной микроскопии, средний диаметр полученных частиц составлял 530 нм, относительное стандартное отклонение не превышало 5%.

Осаждение полистирольных микросфер на вертикально закрепленные подложки, в качестве которых выступали пластинки слюды с напыленным слоем золота толщиной 100–200 нм, проводили из ~ 0.2 об.% водной суспензии при температуре $60 \pm 3^\circ\text{C}$. Ши-

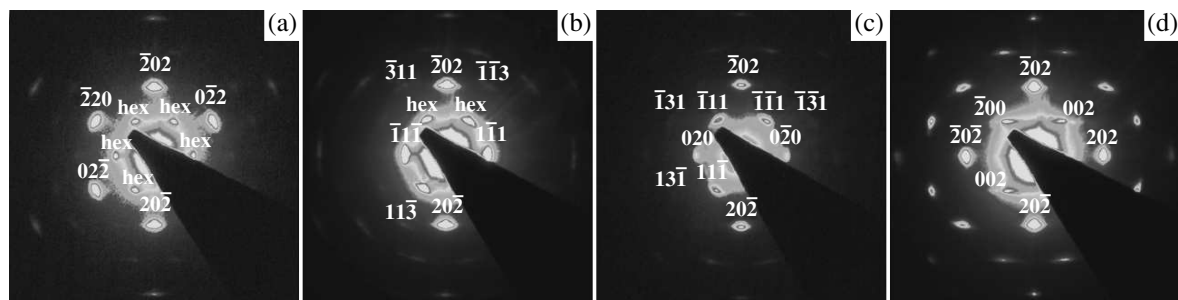


Рис.1. Данные малоугловой дифракции рентгеновского излучения для искусственного опала. Угол падения: (А) 0, (В) 19.5, (С) –35.3, (D) 54.7 градусов. Рефлексы проиндексированы для ГЦК структуры. Отражения, которые не могут быть приписаны ГЦК структуре, обозначены “hex”

рина получаемого фотонного кристалла определяется шириной подложки, которая составляла 1.5 см, в то время как в предположении постоянной скорости испарения растворителя из реакционной смеси длина пленки пропорциональна времени термостатирования. Продолжительность осаждения микросфер составляла ~ 24 ч, что соответствовало образованию пленок длиной около 2 см.

Эксперименты по малоугловой дифракции рентгеновского излучения проводили на голландско-бельгийской станции BM26B “DUBBLE” Европейского центра синхротронных исследований (ESRF) в г.Гренобль (Франция). В работе использовали установку для малоугловой дифракции, использующую фокусирующие элементы, схожую с описанной в [21]. Эта схема великолепно подходит для дифракционного исследования периодических структур с большим периодом и позволяет достигать углового разрешения ~ 5–10 мкрад.

В данной работе длина волны рентгеновского излучения составляла $\lambda = 1.01 \text{ \AA}$, монохроматичность $\Delta\lambda/\lambda = 2 \cdot 10^{-4}$, размер сечения пучка в позиции образца $0.5 \times 0.5 \text{ мм}$. Рентгеновский пучок был сфокусирован с помощью бериллиевой преломляющей оптики [25]. Линзы были установлены непосредственно перед образцом и фокусировали рентгеновское излучение на люминесцентный экран двухкоординатного ПЗС детектора (Photonic Science, разрешение 4000×2700 точек с размером $22 \times 22 \text{ мкм}$), установленного на расстоянии 8 м за образцом.

Образцы закрепляли на гониометрической головке и юстировали таким образом, чтобы при вращении вокруг вертикальной оси (угол ω) рентгеновский пучок попадал в одну и ту же часть кристалла. Для восстановления трехмерной картины обратного пространства были записаны серии дифрактограмм с шагом в 1° в интервале $-75^\circ < \omega < 75^\circ$ в случае природного опала и $-85^\circ < \omega < 85^\circ$ – для искусст-

венного опала. Нулевое значение угла ω соответствует нормальному падению рентгеновского излучения на плоскость образцов. Время экспозиции составляло 30 с для каждой дифракционной карты. Трехмерную реконструкцию обратного пространства по набору дифрактограмм, полученных при различных углах падения рентгеновского излучения на образец, выполняли с помощью разработанного модуля “3D-RRS” для MathCad.

Результаты и обсуждение. На рис.1 приведены дифракционные картины искусственного опала для ряда характерных углов падения рентгеновского излучения на плоскость образца: 0, 19.5, –35.3 и 54.7° (соответствуют зонам $\langle 111 \rangle$, $\langle 121 \rangle$, $\langle 101 \rangle$ и $\langle 010 \rangle$ для ГЦК структуры, ось вращения совпадала с осью $\langle 10\bar{1} \rangle$ образца). Большинство наблюдаемых рефлексов может быть отнесено к одному из двойников ГЦК упаковки – последовательности ABCABC... или ACBACB...

Отметим, что кроме рефлексов, соответствующих целочисленным индексам ГЦК решетки с периодом $a_0 = 750 \text{ нм}$, на рентгенограммах присутствуют также и отражения (отмечены “hex” на рис.1А и В), которые не могут возникать в идеальной ГЦК структуре. Эти отражения могут быть истинно брегговскими рефлексами (например, соответствующими другим сосуществующим типам структур) или представлять собой сечения протяженных диффузных объектов в обратном пространстве. В первом случае картина рассеяния будет указывать на существование в образце некоторого количества гексагональной фазы, а во втором – на наличие дефектов упаковки и/или конечную толщину исследуемых образцов.

При образовании дефектной структуры с нарушением чередования плоских слоев, состоящих из плотноупакованных сфер, в обратном пространстве должны наблюдаться протяженные стержни, причем

распределение интенсивности вдоль таких диффузных объектов характеризует реализуемую структуру [26]. Отметим, что нескольких сечений обратного пространства в общем случае недостаточно для полного описания распределения интенсивности вдоль диффузных стержней.

В настоящей работе нами была проведена трехмерная реконструкция обратного пространства для малоугловых дифракционных экспериментов. Для восстановления полного обратного пространства в программной среде MathCad было разработано приложение, позволяющее проводить трехмерную реконструкцию объекта из набора его двумерных сечений. При малоугловом рассеянии сфера Эвальда в области реконструкции может считаться плоской.

Массив исходных данных включает в себя: 1) дифракционные максимумы, расположенные в узлах обратной решетки, 2) диффузные стержни, являющиеся следствием дефектов упаковки микросфер, и 3) малоугловой диффузный фон с максимумом при $q = 0$, определяемый рассеянием рентгеновского излучения на несовершенствах структуры образца и элементах оптической схемы. При этом, ввиду малой интенсивности диффузных стержней, корректное вычитание фона является важной задачей, определяющей возможность корректной количественной реконструкции картины обратного пространства. Фоновое рассеяние хорошо описывается функцией $1/(q^2 + \zeta^2)$, где q – вектор рассеяния, а $1/\zeta$ – корреляционная длина, в общем случае зависящая от длины когерентности излучения, размера области когерентного рассеяния кристалла, а также форм-фактора исследуемого образца [27]. Исследованные опалы имели форму пластины, в связи с чем сферическая симметрия фонового сигнала была нарушена. Вычленение полезного сигнала из экспериментальных данных проводили вычитанием (для каждого из дифракционных изображений в отдельности) функции диффузного фона. Обнаружено, что на практике наилучшее описание фона ($I_{bg}(q)$) реализуется степенной функцией от q , зависящей от полярного угла и обладающей эллиптическими линиями уровня. Модель фонового сигнала конструировалась по секторам каждого из дифракционных изображений с угловой шириной 5° в полярных координатах.

Функция $I_{bg}(q)$ для каждого сектора имела вид

$$I_{bg}(q) = kq^{-n} + I_{\text{detector}}, \quad (1)$$

где $n = 2 + \delta$ ($\delta \ll 1$), k и n – константы для каждого сектора, I_{detector} – фоновый сигнал детектора, являющийся постоянной величиной. При нахождении $I_{bg}(q)$ точки, принадлежащие дифракци-

онным рефлексам, были временно удалены из массива данных (максимумы находили в автоматическом режиме по экстремумам производной $\partial(Iq^2)/\partial q$, так как, согласно (1), фон характеризуется $\partial((I_{bg} - I_{\text{detector}})q^2)/\partial q \approx 0$). После построения матрицы фонового сигнала проводили двумерное сглаживание функции диффузного фона.

Использованный алгоритм позволил выделить из полного массива экспериментальных данных не только дифракционные максимумы, но и диффузные объекты, отвечающие за дефекты упаковки микросфер, практически полностью исключив при этом малоугловую диффузную составляющую. Полученные данные использовались для нахождения распределения интегральной интенсивности вдоль береговых стержней.

Картины восстановленного обратного пространства для природного опала и синтетического фотонного кристалла приведены на рис.2 в гексагональном базисе, обозначенном векторами \mathbf{b}_1 , \mathbf{b}_2 и \mathbf{b}_3 , где $|\mathbf{b}_1| = |\mathbf{b}_2| = 4\pi/(\sqrt{3}D)$, $|\mathbf{b}_3| = \pi\sqrt{6}/D$, D – диаметр микросфер. В первую очередь, стоит отметить наличие шести достаточно интенсивных протяженных диффузных стержней типа $\{10\xi\}$, параллельных $\langle 001 \rangle$. Сечение этих стержней сферой Эвальда и было обнаружено в виде дополнительных, не соответствующих ГЦК структуре, рефлексов, обозначенных “hex” на рис.1.

Как уже отмечалось выше, появление диффузных стержней свидетельствует о наличии в структуре изучаемых фотонных кристаллов плоских дефектов упаковки гексагональных слоев и/или связано с конечной толщиной образцов. Нарушения в чередовании слоев, как и ожидалось, проявляются только для рефлексов с $(h - k) = 3n \pm 1$ [26, 28]. Не зависящие от наличия дефектов упаковки отражения семейства $(h - k) = 3n$ не обнаруживают заметного уширения, связанного с форм-фактором образца (см. рис.2). Таким образом, структура природного опала, а также синтетического фотонного кристалла, полученного методом вертикального осаждения, не может быть рассмотрена в рамках идеальных ГЦК или ГПУ упаковок. Отметим, что кроме стержней, расположенных вдоль вектора \mathbf{b}_3 , в обоих случаях наблюдается также диффузное рассеяние вдоль других направлений. Эту компоненту диффузного рассеяния естественно соотнести с планарными дефектами, расположенными под углом 70.5° относительно дефектов упаковки, подробно рассмотренных выше.

Для количественного описания опалоподобных дефектных структур удобно пользоваться моделью Вильсона [26, 29], позволяющей определить вероят-

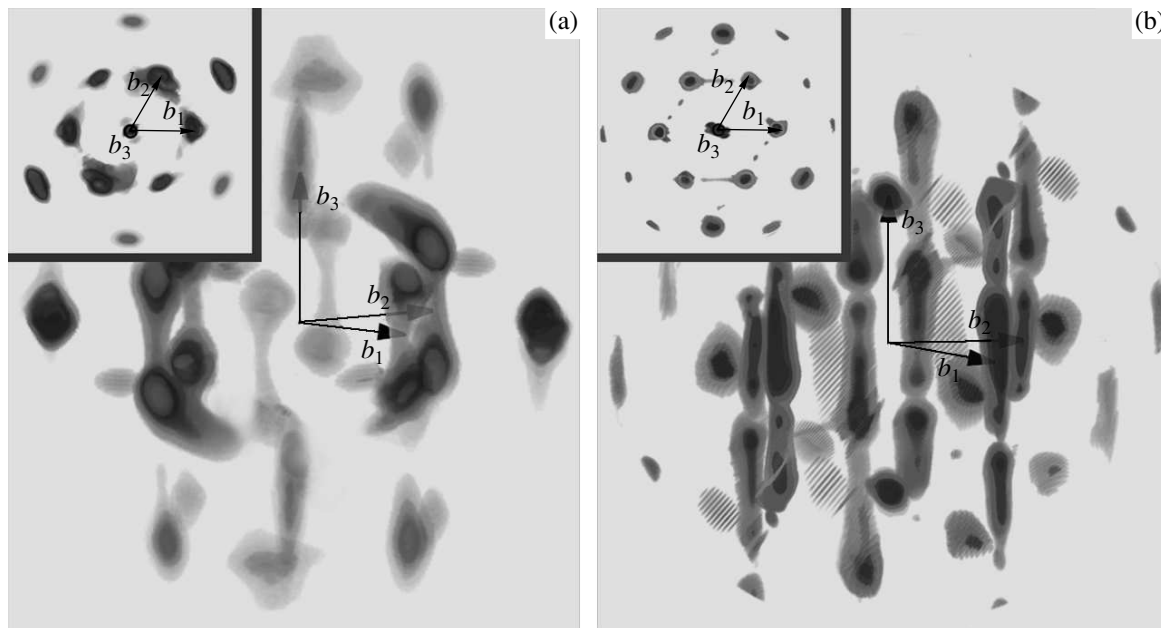


Рис. 2. Трехмерная реконструкция обратного пространства для образцов искусственного (А) и природного (В) опалов. Базисные векторы b_1 , b_2 и b_3 указаны на рисунке. На вставках представлен вид сверху (вдоль вектора b_3) на обратное пространство

ность нахождения слоя в ГЦК или ГПУ окружении из анализа распределения интенсивности вдоль диффузных стержней. Основным параметром данной теории является вероятность α неидентичности n -го и $(n + 2)$ -го слоя плотноупакованных микросфер. Предельные значения α , равные 0 и 1, соответствуют ГПУ и двойникованной ГЦК структурам, соответственно. Промежуточные значения отвечают СГПУ.

Распределение интенсивности вдоль стержней 1-го порядка было найдено путем численного интегрирования экспериментальных данных (см. рис.3). В случае синтетического фотонного кристалла интенсивность симметрично распределена относительно нуля, отчетливо видны максимумы при $l = \pm 0.37$ и ± 1.37 . Теоретический расчет интенсивности по модели Вильсона для $\alpha = 0.65$ с учетом форм-фактора сферических частиц представлен на рис.3А сплошной линией. Удовлетворительное согласие эксперимента и теории позволяет утверждать, что в исследованном искусственном опале каждый слой микросфер с вероятностью $\sim 65\%$ находится в ГЦК окружении.

Анализируя распределение интенсивности вдоль диффузных стержней для природного опала, в первую очередь, следует обратить внимание на наличие интенсивных максимумов при $l \approx -1.3, -0.3, 0.7$, что согласуется с наличием *неравнозаселенных* доменов ГЦК достаточной протяженности. Известно,

что независимо от исходной слоевой конфигурации, преимущество одного типа ГЦК укладки слоев может быть достигнуто в результате одноосной пластической деформации сдвига, приводящей к проскальзыванию слоев [30–33]. Отсюда следует, что в процессе формирования природного опала имели место сдвиговые деформации. Напротив, при синтезе искусственного опала методом вертикального осаждения механические деформации кристалла исключены, и мы наблюдаем формирование СГПУ, в которой блоки двух эквивалентных конфигураций ГЦК структуры формируются с равной вероятностью. Асферичность частиц натурального опала [2] значительно сказывается на распределении интенсивности вдоль диффузных стержней и обязательно должна учитываться при количественном анализе. Детальную картину пространственного распределения слоев в природном опале можно получить лишь при моделировании укладок, соответствующих экспериментально наблюдаемому диффузному рассеянию. Подобные расчеты, однако, выходят за рамки настоящей работы.

Заключение. Предложенный метод анализа данных малоугловой дифракции рентгеновского излучения позволил сделать ряд выводов о структуре природных опалов и искусственных фотонных кристаллов. В обоих случаях структура представляет собой СГПУ укладку микросфер. Структура синтетических фотонных кристаллов, полученных мето-

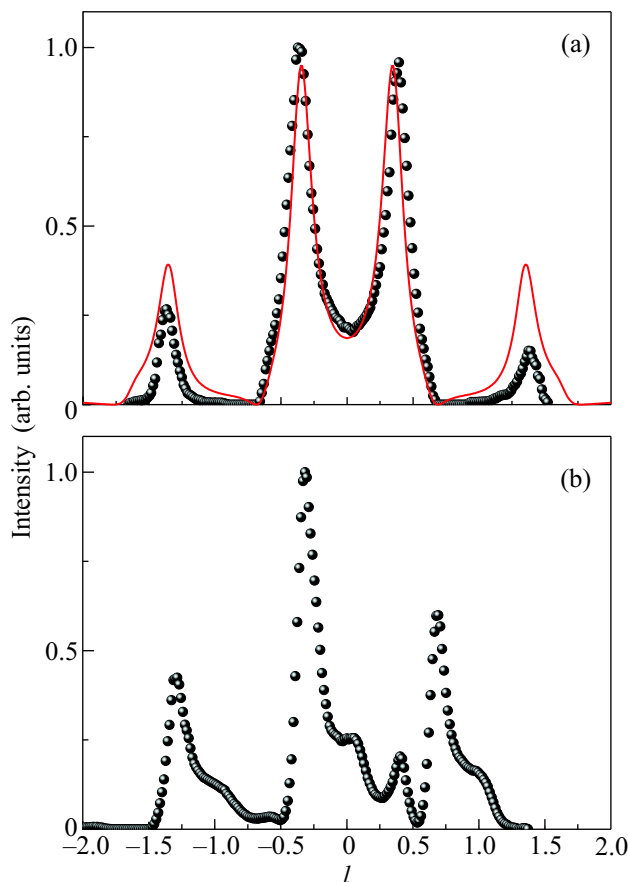


Рис.3. Профили распределения интенсивности вдоль стержней 1-го порядка для образцов искусственного (А) и природного (В) опалов. Сплошная линия на рис.А соответствует теоретическому расчету по модели Вильсона с $\alpha = 0.65$

дом вертикального осаждения, может быть удовлетворительно описана в рамках вероятностной модели Вильсона с преобладанием слоев в ГЦК окружении. Дифракционная картина, наблюдаемая для природного опала, согласуется с наличием неравнозаселенных доменов ГЦК достаточной протяженности, что, по-видимому, вызвано действием внешних сил в процессе формирования кристалла.

Приведенные в настоящей работе данные в форме трехмерной реконструкции обратного пространства являются, по-видимому, самой полной на сегодняшний день характеристикой структуры коллоидных кристаллов. Данный метод универсален и может быть использован, например, при исследовании структуры сверхрешеток наночастиц, массивов квантовых точек или гетероструктур.

В заключение авторы хотели бы выразить благодарность коллективу линии ВМ26В "DUBBLE" Европейского синхротронного центра и лично

D. Detollenaere и А.А. Снигиреву за помощь и техническую поддержку в ходе выполнения эксперимента, а также Швейцарско-Норвежским Линиям (SNBL ESRF) за предоставленную возможность измерений в рамках внутреннего соглашения DUBBLE-SNBL.

1. Большая Советская Энциклопедия, М.: 1973.
2. J. V. Sanders, *Nature* **204**, 1151 (1964).
3. J. V. Sanders, *Acta Cryst. A* **24**, 427 (1968).
4. J. V. Sanders, *Acta Cryst. A* **32**, 334 (1976).
5. E. A. Monroe, D. B. Sass, and S. H. Cole, *Acta Cryst. A* **25**, 578 (1969).
6. E. Yablonovitch, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2059 (1987).
7. S. John, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2486 (1987).
8. J. D. Joannopoulos, R. D. Meade, and J. N. Winn, *Photonic crystals: molding the flow of light*, Princeton University Press, 1995.
9. H. Miguez, C. Lopez, F. Meseguer et al., *App. Phys. Lett.* **71**, 1148 (1997).
10. P. Jiang, J. F. Bertone, K. S. Hwang, and V. L. Colvin, *Chem. Mater.* **11**, 2132 (1999).
11. D. J. Norris, E. G. Arlinghaus, L. Meng et al., *Adv. Mater.* **16**, 1393 (2004).
12. A. L. Rogach, N. A. Kotov, D. S. Koktysh et al., *Chem. Mater.* **12**, 2721 (2000).
13. L. Meng, H. Wei, A. Nagel et al., *Nano Lett.* **6**, 2249 (2006).
14. J. Hilhorst, V. V. Abramova, A. Sinitskii et al., *Langmuir*, DOI: 10.1021/la900983v (2009).
15. H. Wei, L. Meng, Y. Jun, and D. J. Norris, *App. Phys. Lett.* **89**, 241913 (2006).
16. A. van Blaaderen and P. Wiltzius, *Science* **270**, 1177 (1995).
17. J. H. J. Thijssen, A. V. Petukhov, D. C. 't Hart et al., *Adv. Mater.* **18**, 1662 (2006).
18. Yu. A. Vlasov, V. N. Astratov, A. V. Baryshev et al., *Phys. Rev. E* **61**, 5784 (2000).
19. R. Rengarajan, D. Mittleman, C. Rich, and V. Colvin, *Phys. Rev. E* **71**, 016615 (2005).
20. A. V. Petukhov, D. G. Aarts, I. P. Dolbnya et al., *Phys. Rev. Lett.* **88**, 208301 (2002).
21. A. V. Petukhov, J. H. J. Thijssen, D. C. 't Hart et al., *J. App. Cryst.* **39**, 137 (2006).
22. M. Kobas, T. Weber, and W. Steurer, *Phys. Rev. B* **71**, 224205 (2005).
23. T. R. Welberry, *Diffuse X-ray scattering and models of disorder*, Oxford University Press. 2004.
24. J. W. Goodwin, J. Hearn, C. C. Ho, and R. H. Ottewill, *Coll. Pol. Sci.* **252**, 464 (1974).
25. A. Snigirev, V. Kohn, I. Snigireva, and B. Lengeler, *Nature* **384**, 49 (1996).

26. W. Loose and B. J. Ackerson, *J. Chem. Phys.* **101**, 7211 (1994).
27. A. Guinier and G. Fournet, *Small-Angle Scattering of X-Rays*, John Wiley and Sons, 1955.
28. H. Versmold, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 763 (1995).
29. A. J. C. Wilson, *Proc. R. Soc. London Ser. A* **180**, 277 (1941).
30. S. E. Paulin, B. J. Ackerson, and M. S. Wolfe, *Phys. Rev. E* **55**, 5812 (1997).
31. C. Dux and H. Versmold, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1811 (1997).
32. T. Sawada, Y. Suzuki, A. Toyotama, and N. Iyi, *J. J. App. Phys. P.2* **40**, L1226 (2001).
33. R. M. Amos, J. G. Rarity, P. R. Tapster et al., *Phys. Rev. E* **61**, 2929 (2000).