

Монте-Карло расчет коэрцитивной силы и фазовых переходов в ансамбле обменно-взаимодействующих стонер-вольфартовских частиц

В.М. Калита, Н.Н. Кулик, С.М. Рябченко

Інститут фізики НАН України, пр. Науки, 46, г. Київ, 03028, Україна

E-mail: nikolaj.kulik.ifnasu@gmail.com

Статья поступила в редакцию 24 июня 2016 г., опубликована онлайн 24 января 2017 г.

С помощью метода Монте-Карло (МК) изучено намагничивание ансамбля стонер-вольфартовских частиц с межчастичным взаимодействием ферромагнитного типа. Предложена модификация процедуры МК расчета, ускоряющая вычисления. Исследовано намагничивание ансамбля при разных температурах и разных соотношениях величин обменного поля межчастичного взаимодействия и поля одноосной магнитной анизотропии частиц. Показано, что неелевская релаксация оказывает существенное влияние на коэрцитивные свойства ансамбля, если межчастичное обменное поле не превосходит поля анизотропии частиц. Также получено, что при низких температурах коэрцитивные свойства обменно-взаимодействующих стонер-вольфартовских частиц связаны с потерей устойчивости ориентации вектором среднего магнитного момента частиц. При высоких температурах коэрцитивность ансамбля частиц связана с полной потерей устойчивости суперферромагнитного состояния. Проанализированы критические поля и критические температуры ансамбля обменно-связанных стонер-вольфартовских частиц.

За допомогою методу Монте-Карло (МК) вивчено намагнічування ансамблю стонер-вольфартовських частинок з міжчастинковою взаємодією феромагнітного типу. Запропоновано модифікацію процедури МК розрахунку, яка прискорює обчислення. Досліджено намагнічування ансамблю при різних температурах і різних співвідношеннях величин обмінного поля міжчастинкової взаємодії і поля одновісної магнітної анізотропії частинок. Показано, що неєлевська релаксація істотно впливає на коерцитивні властивості ансамблю, якщо міжчастинкове обмінне поле не перевищує поля анізотропії частинок. Також отримано, що при низьких температурах коерцитивні властивості обмінно-взаємодіючих стонер-вольфартовських частинок пов'язані з втратою стійкості орієнтації вектором середнього магнітного моменту частинок. При високих температурах коерцитивність ансамблю частинок пов'язана з повною втратою стійкості суперферромагнітного стану. Проаналізовано критичні поля і критичні температури ансамблю обмінно-зв'язаних стонер-вольфартовських частинок.

PACS: 02.50.Ng Теория распределения и исследования методом Монте-Карло;

75.75.-c Магнитные свойстваnanoструктур;

74.62.-c Вариации температуры перехода, фазовые диаграммы;

75.20.-g Диамагнетизм, парамагнетизм, суперпарамагнетизм.

Ключевые слова: Монте-Карло моделирование, среднее поле, суперферромагнетизм, блокированное состояние, обменное взаимодействие наночастиц.

1. Введение

Хорошо известно, что в ансамбле стонер-вольфартовских (СВ) магнитных частиц при температурах ниже температуры блокировки ($T < T_b$) величина коэрцитивной силы зависит от температуры и следует закону Нееля–Броуна [1,2]. Она связана с неелевской релакса-

цией магнитных моментов частиц, блокированных анизотропией.

Межчастичное взаимодействие обменного типа, величина которого пропорциональна скалярному произведению магнитных моментов соседних частиц [3,4], может влиять на коэрцитивную силу и ее температурную зависимость [5]. Обменное поле межчастичного

взаимодействия, совместно с анизотропией частиц, способствует блокированию направлений их магнитных моментов, что может привести к усилению коэрцитивности при $T < T_b$ [5] либо ее появлению при $T_b < T < T_{SF}$, где T_{SF} — температура суперферромагнитного (СФМ) упорядочения. Возможность образования СФМ состояния в результате присутствия взаимодействия обменного типа между СВ частицами, если $T_{SF} > T_b$, была показана в работах [4–7].

При $T < T_{SF}$ за счет межчастичного обменного поля ферромагнитного типа устанавливается коррелированная (согласованная) ориентация магнитных моментов частиц в одном направлении. Возникновение СФМ состояния подобно спонтанному возникновению намагниченности в ферромагнетиках ниже точки Кюри. В суперпарамагнитном состоянии, предшествующем СФМ, при $T > T_{SF} > T_b$ намагничивание ансамбля частиц безгистерезисное и подобно ланжевеновскому, хотя наличие анизотропии у частиц несколько отклоняет его от «истинно ланжевеновского» [8].

Если $T < T_{SF}$ и $T_b < T_{SF}$, то спонтанное ориентирование магнитных моментов частиц межчастичным обменным полем будет происходить вдоль их осей легкого намагничивания. В этом случае при перемагничивании внешним полем, направленным вдоль оси анизотропии частиц, должен наблюдаться гистерезис, даже при температурах $T_b < T < T_{SF}$, с величиной коэрцитивной силы, зависящей как от величины поля анизотропии частиц, так и от величины критического поля границы устойчивости СФМ фазы [5,9]. В области перемагничивания такая система имеет два источника возможных неравновесных состояний. Во-первых, каждая СВ частица обладает одноосной анизотропией, и в силу этого зависимость ее энергии от направления магнитного момента относительно легкого направления анизотропии описывается двухъярусным потенциалом. Если среднее время для возможных термоактивированных переходов направления магнитного момента между этими двумя ямами больше времени наблюдения за системой, то на участке перемагничивания с внешним полем, направленным против направления магнитного момента частицы, она (система) в течение этого времени будет находиться в метастабильном состоянии. Эта неравновесность связана с неелевской релаксацией. Во-вторых, если в системе имеется обменное поле, связанное с взаимодействием частиц, то каждая частица будет «видеть» на себе сумму внешнего поля, обменного поля и поля анизотропии. Она может не изменять направление своего момента, пока внешнее поле не достигнет границы устойчивости СФМ фазы.

При перемагничивании ансамбля СВ частиц в СФМ состоянии может происходить потеря устойчивости для направления вектора среднего магнитного момента частиц. В этом случае в критическом поле при перемагничивании сохраняется межчастичное обменное

поле, которое поворачивается вместе с вектором среднего магнитного момента частиц. Такое перемагничивание ансамбля СВ частиц в СФМ состоянии подобно скачкообразному изменению спонтанной намагниченности ферромагнетиков при ориентационных фазовых переходах [10], и ему соответствует критическое поле разворота вектора средней намагниченности, равное у одноосных ферромагнетиков полю анизотропии [11]. В то же время в СФМ состоянии ансамбля СВ частиц может происходить полная потеря устойчивости СФМ состояния с предыдущей ориентацией среднего магнитного момента частиц. В этом случае при перемагничивании в критической точке также наблюдается скачок для величины вектора среднего магнитного момента частиц. При полной потере устойчивости СФМ состояния величина критического поля меньше поля анизотропии частиц. Подобная ситуация рассматривалась, например в работах [5,9]. Такое перемагничивание подобно переходу 1-го рода в изинговских магнетиках или магнетиках, у которых обменное поле меньше поля анизотропии, в них в критической точке обменное поле скомпенсировано внешним полем и при перемагничивании не сохраняется [12,13].

Влияние межчастичного обменного взаимодействия на гистерезис перемагничивания ансамбля СВ частиц рассматривалось ранее в ряде работ, например в [5,9,14]. В работах [5,15] задача рассматривалась в приближении среднего поля. При этом для анализа изменения намагниченности ансамбля в медленно изменяющемся внешнем поле с постоянной скоростью его развертки, зависящего от времени, использовалось релаксационное уравнение [5]. Учет изотропного межчастичного взаимодействия в этом уравнении сводился к добавке к внешнему полю величины эффективного обменного поля, содержащей проекцию обменного изотропного поля на легкую ось. Такое приближение позволило описать влияние обменного межчастичного взаимодействия на гистерезис, связанный с полной потерей устойчивости СФМ состояния. Однако учет вклада обменного поля только в виде его проекции на легкую ось анизотропии частиц не позволил выявить в работах [5,9] влияния на коэрцитивную силу ансамбля ориентационной неустойчивости вектора среднего магнитного момента частиц. Кроме того, в [5,9] расчет энергий частиц в двухъярусном потенциале одноосной анизотропии проводился в рамках двухуровневой модели. Это ограничивало использование подхода [5,9] вплоть до температур, заметно больших T_b , поскольку при высоких температурах ($T > T_b$) двухуровневое приближение не выполняется. Фазовое пространство ориентаций векторов магнитных моментов частиц при этом больше, чем две точки, что должно сказываться на намагничивании ансамбля частиц и температуре образования СФМ состояния.

В настоящей работе будет исследовано поведение перемагничивания ансамбля СВ частиц в случае нали-

чия обменного взаимодействия между ними, энергия которого может быть больше энергии анизотропии. Мы учтем возможность критического перемагничивания ансамбля СВ частиц при потере ориентационной устойчивости вектором среднего магнитного момента частиц, а также рассмотрим перемагничивание при полной потере устойчивости СФМ состояния. Для получения петель гистерезиса мы воспользуемся алгоритмом Метрополиса в методе Монте-Карло (МК).

Как правило, этот алгоритм метода МК используют для расчетов равновесных конфигураций многочастичных систем, поскольку он в пределе бесконечного числа МК шагов должен приводить к равновесной конфигурации системы [16,17]. При описании гистерезисных свойств магнитных наночастиц их ансамбль, как минимум при $T < T_b$, находится в неравновесном состоянии. Предполагается, что расчет МК с ограниченным числом шагов эквивалентен наблюдению за системой в течение ограниченного времени и поэтому позволяет анализировать и неравновесные состояния. В МК методе параметры релаксации намагниченности СВ наночастиц не фигурируют, поэтому найти аналитически связь между числом шагов МК и временем наблюдения за системой не представляется возможным. В работе [18] было установлено соответствие между временем наблюдения за системой, с одной стороны, и числом шагов и апертурой отклонения направления момента частицы, с другой, для ансамбля невзаимодействующих СВ наночастиц, намагничиваемых вдоль легкой оси одноосной анизотропии путем сравнения результатов МК расчета с использованием алгоритма Метрополиса и расчета с учетом термоактивированной релаксации намагниченности частиц. Однако в системе обменно-взаимодействующих СВ наночастиц имеется одновременно два типа неравновесности. Во-первых, это неравновесность перемагничивания блокированных анизотропией магнитных моментов частиц, связанная с различием времени измерения и времени релаксации; во-вторых, неравновесность другого, нерелаксационного типа, связанная с границей устойчивости СФМ фазы. Проявление этих двух неравновесностей в расчете методом МК с алгоритмом Метрополиса должно было быть и оказалось разным. Таким образом, в случае обменно-связанных частиц соответствие, найденное в [18], не должно работать. В результате проведение МК расчетов потребовало определенного дополнительного подхода к выполнению вычислений, чтобы правильно отразить результат сочетания указанных выше неравновесностей, одновременно сократив требования к времени расчетов (числу шагов).

Структура данной работы следующая. В разд. 2 описывается модель ансамбля СВ частиц с взаимодействием между ними обменного типа. Раздел 3 посвящен анализу свойств МК расчета при наличии двух типов неравновесности в системе и проведению расче-

та согласно описанной модифицированной процедуре. Результаты моделирования и обсуждение представлены в разд. 4.

2. Модель

Рассмотрим ансамбль одинаковых частиц с энергией магнитной анизотропии частицы, зависящей от проекций ее магнитного момента, $E_A = -AM_z^2 - BM_y^2 - CM_x^2$, где константы анизотропии удовлетворяют условию $A > B > C > 0$. С учетом сохранения модуля магнитного момента частицы $M_z^2 + M_y^2 + M_x^2 = M^2 = \text{const}$ энергия анизотропии частицы может быть переписана в виде $E_A = -(A-C)M_z^2 - (B-C)M_y^2$. Если A и $B \gg C$, то частицу можно рассматривать как имеющую легкоплоскостную анизотропию в плоскости zy с легкоосевой анизотропией вдоль оси z в этой плоскости. Для такой частицы, с сильной легкоплоскостной и слабой внутрiplоскостной анизотропией, при ее намагничивании магнитным полем $\mathbf{H} \parallel z$ вектор магнитного момента частицы будет всегда лежать в плоскости zy . Другими словами, для частицы с сильной легкоплоскостной и со слабой внутрiplоскостной анизотропией объем фазового пространства состояний частицы при намагничивании полем вдоль легкой оси будет равен 2π . Вектор магнитного момента частицы будет иметь лишь одну степень свободы, отвечающую азимутальному углу ориентации магнитного момента частицы в легкой плоскости.

Для описания намагничивания системы взаимодействующих частиц со слабой одноосевой анизотропией внутри легкой плоскости в магнитном поле $\mathbf{H} \parallel z$ ограничимся рассмотрением только внутрiplоскостной анизотропии. Будем полагать, что соотношение легкоплоскостной и внутрiplоскостной анизотропий таково, что векторы магнитных моментов частиц при перемагничивании в $\mathbf{H} \parallel z$ не выходят из легкой плоскости. При этом они могут принимать в ней любые направления.

Полную энергию ансамбля с легкоплоскостными частицами со слабой легкоосевой анизотропией в легкой плоскости в $\mathbf{H} \parallel z$ запишем в виде

$$E = -\frac{1}{2}KV \sum_{\mathbf{n}} \cos^2 \phi_{\mathbf{n}} - \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{nm}} I_{\mathbf{nm}} \mathbf{M}_{\mathbf{n}} \mathbf{M}_{\mathbf{m}} - H \sum_{\mathbf{n}} M_{nz}, \quad (1)$$

где векторы \mathbf{n} , \mathbf{m} задают позиции частиц, $\mathbf{M}_{\mathbf{n}}$, $\mathbf{M}_{\mathbf{m}}$ — векторы магнитных моментов частиц, $K = 2(A-B)M^2/V$ — традиционное обозначение константы осевой анизотропии, V — объем частицы, $M_{nz} = M \cos \phi_{\mathbf{n}}$, а $I_{\mathbf{nm}} > 0$ — константа обменного взаимодействия между двумя ближайшими частицами.

В сильном насыщающем поле $\mathbf{M}_{\mathbf{n}} \parallel \mathbf{M}_{\mathbf{m}}$ величина обменной энергии для всего ансамбля может быть записана как

$$-\frac{1}{2}M^2 \sum_{\mathbf{nm}} I_{\mathbf{nm}} = -\frac{1}{2}M^2 cNI,$$

где N — число частиц, c — число парных связей частиц, равное числу ближайших взаимодействующих пар частиц, разделенному на число частиц, I — средняя величина константы обмена.

Энергия одной частицы ансамбля в приближении среднего поля имеет вид

$$E_{\mathbf{n}} = -\frac{1}{2}KV \cos^2 \varphi_{\mathbf{n}} - \mathbf{H}_{\text{exch}} \mathbf{M}_{\mathbf{n}} - HM \cos \varphi_{\mathbf{n}}, \quad (2)$$

где $\mathbf{H}_{\text{exch}} = cI\mathbf{M}_a$ — обменное поле, пропорциональное среднему магнитному моменту ансамбля $\mathbf{M}_a = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{n}} \mathbf{M}_{\mathbf{n}}$.

Для удобства численных расчетов нормируем выражение (2) на энергию анизотропии частицы. Поделив выражение (2) на KV , получим:

$$e_{\mathbf{n}} = -\frac{1}{2} \cos^2 \varphi_{\mathbf{n}} - h_{\text{exch}} \cos(\varphi_{\mathbf{M}} - \varphi_{\mathbf{n}}) - h_{\text{exter}} \cos \varphi_{\mathbf{n}}, \quad (3)$$

где $h_{\text{exch}} = |\mathbf{h}_{\text{exch}}|$ — модуль обменного поля, а $\varphi_{\mathbf{M}_a}$ — угол между направлением обменного поля, параллельного среднему магнитному моменту ансамбля частиц, и осью z , поле анизотропии частицы равно $H_A = KV/M$, а другие параметры нормированы: $e_{\mathbf{n}} = E_{\mathbf{n}} / KV$, $\mathbf{h}_{\text{exch}} = \mathbf{H}_{\text{exch}} / H_A$, $h_{\text{exter}} = H / H_A$. Также следует ввести безразмерную температуру $T_{\text{red}} = kT / KV$, где k — постоянная Больцмана. Рассчитываемое далее коэрцитивное поле будет приведено в безразмерном виде $h_C = H_C / H_A$.

3. Моделирование кривых перемагничивания

Для моделирования кривых намагничивания ансамбля наночастиц мы использовали метод МК, в частности алгоритм Метрополиса. Приближение среднего поля, использованное для получения (2), (3), вместе с методом МК являются одними из самых популярных и в тоже время эффективных методов численного моделирования фазовых переходов в системах с большим количеством частиц [19–23].

Процедура метода предполагает первоначальную термализацию ансамбля путем проведения большого числа МК шагов в некотором поле. Далее производится поиск локального минимума энергии ансамбля. При этом на каждом шаге марковского процесса, который реализуется в методе МК, для имеющейся исходной конфигурации ориентаций магнитных моментов частиц рассчитывается новая конфигурация, полученная путем рассмотрения возможных отклонений направления магнитных моментов частиц от предыдущего положения на случайную величину в пределах апертуры: $\varphi_{\text{new}} \in [\varphi_{\text{old}} - \Delta\varphi, \varphi_{\text{old}} + \Delta\varphi]$. Далее рассчитываются вероятности ω_{12} , с помощью которых принимается решение о допустимости новой ориентации магнитного момента частицы,

$$\omega_{12} = \begin{cases} 1 & \text{при } E_1 > E_2, \\ \frac{E_1 - E_2}{T_{\text{red}}} & \text{при } E_1 < E_2, \end{cases} \quad (4)$$

где E_1, E_2 — нормированные энергии ансамбля частиц для старой и новой конфигураций направлений их магнитных моментов соответственно, T_{red} — нормированная температура. Если в (4) величина $\omega_{12} = 1$, то случайное отклонение считается осуществленным и дальше рассматривается новое состояние с измененной ориентацией. Если в (4) величина $\omega_{12} < 1$, то это значение вероятности сравнивается со случаем числом, лежащим в пределах от 0 до 1. Если вероятность ω_{12} больше этого случного числа ($\omega_{12} > \text{random}(0...1)$), то происходит изменение направления векторов частиц, если $\omega_{12} < \text{random}(0...1)$, то остается исходная конфигурация.

После полного цикла с избранным числом итераций для ансамбля рассчитываются его макроскопические характеристики — направление и величина вектора среднего магнитного момента частиц \mathbf{M}_a , а также величина обменного поля h_{exch} . После этого цикл повторяется.

Возможны два варианта расчета конфигураций магнитных моментов частиц. Первый вариант — расчет конфигурации в результате последовательного отклонения магнитных моментов частиц, «по одной», когда на каждой итерации осуществляется случайное изменение направления магнитного момента только одной частицы, а условие (4) используется как критерий допустимости этого отклонения. Во втором варианте в ходе одной итерации осуществляются одновременные случайные отклонения для направлений векторов магнитных моментов всех частиц. В литературе обсуждено (см., например, [17], с. 15), что второй путь требует большего числа шагов для приближения результатов МК расчета к равновесной конфигурации, хотя первый крайне плохо описывает коллективные движения в ансамбле частиц.

Обсудим теперь, какое поведение коэрцитивности с температурой мы должны ожидать в рассматриваемой нами системе при условии, что «обменное поле», действующее на частицу, заметно превышает поле анизотропии? Учтем, что направления векторов магнитных моментов частиц удерживаются полем анизотропии, которое является одночастичным. Во внешнем магнитном поле, превышающем поле анизотропии, это удерживающее влияние должно прекращаться. Вместе с тем изотропное обменное поле удерживает направления моментов всех частиц в СФМ состоянии параллельными друг другу. Таким образом, во внешнем поле, абсолютная величина которого превышает поле анизотропии, единственному минимуму энергии будет соответствовать ориентация всех моментов вдоль него.

В результате следует ожидать, что после изменения знака внешнего магнитного поля, при перемагничивании во внешнем поле, которое по абсолютной величине равно полю анизотропии, направления моментов всех частиц лавинообразно повернутся вдоль нового направления внешнего поля, поворачивая обменное поле вслед за собой. Этот процесс в поле h_{exter} , несколько меньшем единицы при конечной температуре, будет подобен ориентационной неустойчивости в обычном ферромагнетике — все частицы должны одновременно изменить свое направление на конечный угол.

С учетом того, что величина модуля нормированного поля анизотропии n -й частицы равна $|\cos \varphi_n|$, величина критического поля анизотропии, удерживающего конфигурацию при $T > 0$, должна быть равна

$$H_{\text{cr}} = H_A \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{n}} |\cos \varphi_{\mathbf{n}}| \text{ или } h_{\text{cr}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{n}} |\cos \varphi_{\mathbf{n}}|. \quad (5)$$

Учитывая, что в полях, меньших или близких к H_{cr} , углы отклонений моментов частиц от направления легкой оси анизотропии $\varphi_{\mathbf{n}}$ малы, следует ожидать, что, по крайней мере, в низкотемпературной области величина h_{cr} близка, хотя и несколько меньше единицы.

Нами был проведен расчет зависимости коэрцитивного поля от температуры (обе величины в безразмерном, нормированном виде), для примера $h_{\text{exch}} = 2$, с использованием двух упомянутых выше вариантов расчета конфигураций магнитных моментов частиц: расчета с последовательным отклонением магнитных моментов частиц «по одной» и расчета с одновременными случайными отклонениями векторов магнитных моментов сразу для каждой из частиц. Результаты этих расчетов показаны на рис. 1 кривыми 1 и 2, проведенными по расчетным точкам.

Кривые 1 и 2 получены при разных величинах апертуры углов для векторов магнитных моментов частиц и для разного числа частиц и итераций. Для кривой 2 апертура $\Delta\varphi = 2^\circ$, число итераций 50 000, а число частиц 1000. Как видно, зависимости h_C от температуры не соответствуют описанным выше и ожидаемым. Прежде всего, в области $T_{\text{red}} \rightarrow 0$, h_C стремится к величине $h_A + h_{\text{exch}}$, когда разность внешнего и обменного полей достигнет величины поля анизотропии. Это означает, что обменное поле в области гистерезиса все время остается противонаправленным внешнему.

Низкотемпературная область, где расчет показывает такую особенность, противоречащую физическому смыслу задачи, шире у кривой 2 (алгоритм с одновременным случайным отклонением направлений моментов всех частиц сразу), чем у кривой 1, и, как видно на вставке к рис. 1, сужается с ростом числа итераций. Эта особенность может быть понята из рассмотрения критерия (4) изменения конфигурации. При $T_{\text{red}} \rightarrow 0$ этот критерий сводится к неравенству $E_2 < E_1$, и веро-

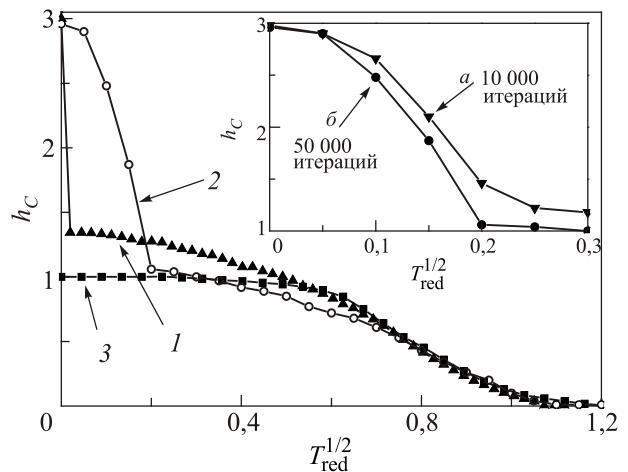


Рис. 1. Зависимости $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}})$ для разной реализации расчета методом Монте-Карло: 1 — последовательный перебор узлов «по одному»; 2 — одновременное отклонение всех магнитных моментов в системе при каждой итерации; 3 — последовательный перебор узлов с условием (5). Расчет произведен для параметров $h_A = 1$, $h_{\text{exch}} = 2$, число частиц равно 1000. Для кривых 1 и 3 проводилось 3 000 итераций, а для 2 — 50 000 итераций. На вставке показан ход низкотемпературного участка зависимости $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}})$, полученный в расчетах при одновременном отклонении всех магнитных моментов, но при разных значениях числа итераций: число итераций 10 000 (а), 50 000 (б).

ятность принятия измененной конфигурации резко снижается.

В области более высоких температур зависимости $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}})$ показывают ожидаемое выполнование, однако кривая 1 выполняется в области значений $h_C = 1,2\text{--}1,4$ в отличие от ожидаемых значений для h_{cr} . Увеличение числа итераций сдвигает область выполнования ближе к ожидаемому значению h_{cr} , но этот сдвиг очень медленный, и прогнозируемое время расчета, при котором это значение будет достигнуто, выходит за пределы разумного. Что касается расчетов кривой 2 по процедуре, учитывающей одновременные случайные отклонения направлений моментов всех частиц, которая, согласно [17], лучше учитывает коллективные движения (поворот к внешнему полю совокупного магнитного момента ансамбля), то после нефизического результата в области низких температур эта кривая довольно быстро переходит к значениям h_C , соответствующим ожидаемым для h_{cr} . Однако расчет по этой процедуре требует очень большого числа МК итераций даже в сравнении с первым вариантом расчета.

Мы решили реализовать модифицированный МК расчет, сочетающий стандартную процедуру алгоритма Метрополиса с действием, основанным на физических соображениях. Если в процессе перемагничивания в области магнитных полей, когда внешнее поле

уже изменило свой знак, а направление намагниченности частиц еще сохраняет ориентацию, противоположную ему, выполняется условие $h_{\text{exter}} = -h_{\text{cr}}$, то в системе должен происходить переход к новой конфигурации путем поворота намагниченности к направлению вдоль действующего на нее поля при сохранении абсолютной величины обменного поля. То есть должно происходить изменение углов $\varphi_{\mathbf{n}} \rightarrow \varphi_{\mathbf{n}} + \pi$. Такой поворот векторов магнитных моментов частиц отвечает потере устойчивости направления вектора среднего магнитного момента частиц. Этот поворот был введен нами в процедуру расчета. При этом значения h_{cr} (5) вычислялись суммированием $|\cos \varphi_{\mathbf{n}}|$ для конфигураций, которые принимались в результате выполнения заданного числа циклов МК. После поворота магнитных моментов последующие циклы расчетов дополнительно согласуют параметры новой конфигурации. Такое дополнение к методу Монте-Карло позволяет существенно упростить расчеты в низкотемпературной области без увеличения числа итераций и сохраняет учет неелевской релаксации магнитных моментов частиц.

Результат расчета зависимости $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}})$ с использованием предложенного метода показан на рис. 1 кривой 3. Как видно, она полностью соответствует ожидаемому поведению обсуждаемой зависимости как при низких, так и при более высоких температурах. При последних она практически совпадает с кривой 2, требуя для своего расчета значительно меньшего времени. При относительно высоких температурах кривая 3 идет несколько выше кривой 2. Можно полагать, что это различие отражает то обстоятельство, что кривая 2 рассчитана при заметно большем числе итераций, чем 3. Поэтому в МК расчете ей соответствует более низкая температура блокировки, что приводит к более низкому расчетному значению h_C .

4. Результаты моделирования и обсуждение

Расчеты проводились как вычисление кривых перемагничивания при «равномерной развертке» внешнего магнитного поля, т.е. с одинаковым его шагом от точки к точке. Величина апертуры (допустимое отклонение угла направления вектора магнитного момента при одном МК шаге) выбиралась в пределах $\Delta\varphi = \pm\pi/12$. Расчеты проводились для разных величин обменных полей в интервале $0 < h_{\text{exch}} < 10$ и в интервале внешних полей от $h_{\text{exter}} = (h_{\text{exter}})_{\text{max}}$ до $h_{\text{exter}} = -(h_{\text{exter}})_{\text{max}}$.

На рис. 2 приведены результаты расчетов кривых перемагничивания для разных температур с использованием МК процедуры, дополненной поворотом намагниченности при достижении критического поля (5). На рис. 2(а) показаны кривые перемагничивания, полученные из расчета, для развертки поля $h_{\text{exter}} = (h_{\text{exter}})_{\text{max}}(1-i/p)$, где $(h_{\text{exter}})_{\text{max}}$ — амплитуда поля развертки, i — натуральное число, которое пробегает значения от 0 до $2p$. При этом шаг поля равен $(h_{\text{exter}})_{\text{max}}/p$, и оно разворачивается с этим шагом от $(h_{\text{exter}})_{\text{max}}$ до $-(h_{\text{exter}})_{\text{max}}$. Кривые для полевой зависимости среднего, нормированного магнитного момента частиц $M_{\text{red}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{n}} \cos \varphi_{\mathbf{n}}$ являются типичными для всего исследуемого диапазона полей $0 < h_{\text{exch}} < 10$. При низких температурах кривые $M_{\text{red}}(h_{\text{exter}})$ имеют вид петель гистерезиса прямоугольной формы. Они позволяют найти значения h_C при разных температурах.

На рис. 2(б) приведены графики полевых зависимостей $M_{\text{red}}(h_{\text{exter}})$, рассчитанные по той же процедуре что и на рис 2(а) при отсутствии первого члена в правой части выражения (3), описывающего одноосную анизотропию. На этих кривых практически нет гистерезиса. При высоких температурах средний магнитный момент в $h_{\text{exter}} = 0$ равен нулю, а намагничивание по-

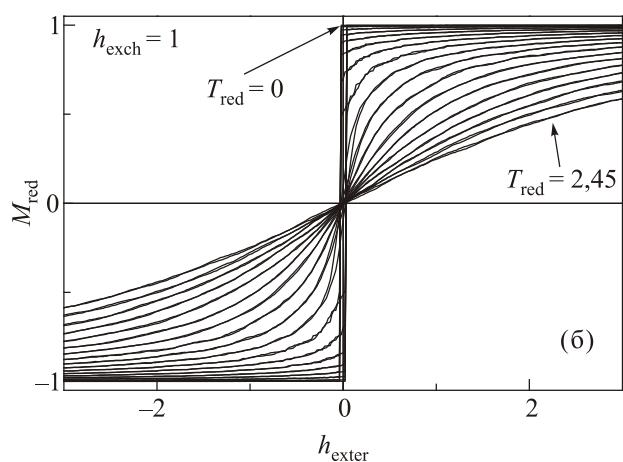
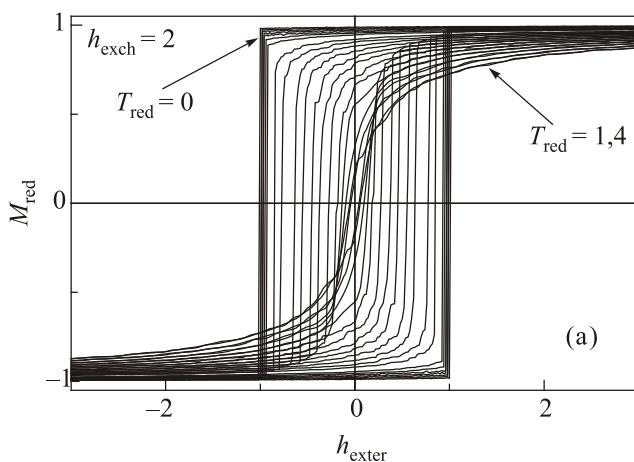


Рис. 2. Кривые намагничивания получены для величины обменного поля $h_{\text{exch}} = 2$ в диапазоне температур от $T_{\text{red}} = 0$ (самая широкая петля) до 1,4 (самая узкая петля) (а); полевые зависимости $M_{\text{red}}(h_{\text{exter}})$, рассчитанные при отсутствии первого члена в правой части выражения (3), описывающего одноосную анизотропию (б).

добно ланжевеновскому. При низких температурах при прохождении точки $h_{\text{exter}} = 0$, при развертке от положительных к отрицательным значениям поля средний магнитный момент испытывает скачок от $M_{\text{red}}^{(s)}$ до $-M_{\text{red}}^{(s)}$, где $M_{\text{red}}^{(s)}$ — величина спонтанного магнитного момента частиц СФМ фазы, которая несколько меньше модуля магнитного момента частицы, и только в пределе $T \rightarrow 0$ их величины совпадают между собой.

Для выяснения роли влияния обменного взаимодействия на возникновение гистерезиса проанализируем температурную зависимость $h_C(T_{\text{red}})$. На рис. 3 показан ход температурной зависимости величины коэрцитивного поля $h_C(T_{\text{red}})$. Расчеты проведены с использованием условия (5). Крайняя левая кривая на рис. 3 отвечает изменению коэрцитивной силы при $h_{\text{exch}} = 0$, когда коэрцитивная сила связана только с неелевской релаксацией. Ее поведение на линейном участке описывается формулой Нееля–Броуна:

$$h_C = 1 - \sqrt{T_{\text{red}} / T_{\text{red}}^{(b)}}, \quad (6)$$

где $T_{\text{red}}^{(b)}$ — нормированная величина температуры блокировки.

При $h_{\text{exch}} \neq 0$, но $h_{\text{exch}} < 1$ ход кривых $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}})$ (они на рис. 3 обозначены открытыми кружочками) изменяется с переходом температуры через определенное значение, которое мы будем отождествлять с температурой блокировки $T_{\text{red}}^{(b)}$. При $T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{(b)}$ (слева от вертикальной пунктирной прямой) при $0 < h_{\text{exch}} < 1$ линейный ход зависимости $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}})$ сохраняется, с сохранением параллельности линейных участков. Несмотря на возрастание величины коэрцитивного поля с возрастанием h_{exch} , возникновение коэрцитивности при $h_{\text{exch}} < 1$ и при $T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{(b)}$, а также наклоны кривых $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}})$ связаны с блокированием ориентаций векторов

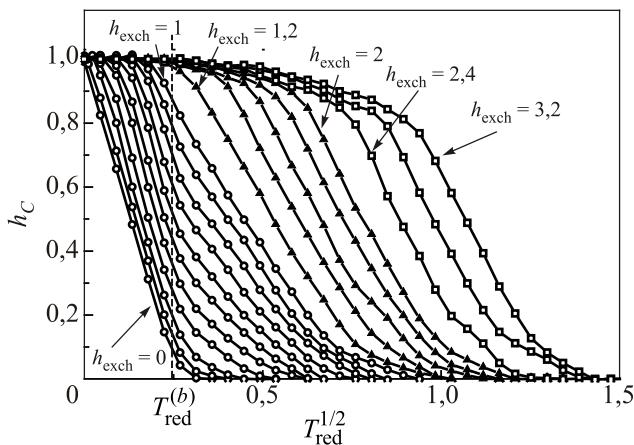


Рис. 3. Температурная зависимость коэрцитивного поля. Для кривых, обозначенных открытыми кружочками, шаг для величины поля h_{exch} равен 0,1, для кривых, обозначенных треугольниками, шаг h_{exch} равен 0,2, для кривых, обозначенных квадратами, шаг h_{exch} равен 0,4.

торов магнитных моментов частиц полем одночастичной анизотропии. Таким образом, при $h_{\text{exch}} < 1$ ниже температуры блокировки коэрцитивность вызвана двумя процессами: неелевской релаксацией и влиянием обменного поля.

При $T_{\text{red}}^{(b)} < T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{SF}$, где T_{red}^{SF} — нормированная температура возникновения СФМ состояния, возникновение коэрцитивной силы связано с СФМ состоянием, в котором направление моментов удерживается полем анизотропии. Как можно было видеть на рис. 2(б), в отсутствие анизотропии коэрцитивность не возникает. Для интервалов температур $T_{\text{red}}^{(b)} < T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{SF}$ так же, как и для $T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{(b)}$, при перемагничивании происходит скачок намагниченности в точках $h_{\text{exter}} = \pm h_C$.

Как видно на рис. 3, при $T_{\text{red}} \rightarrow 0$ температурная зависимость коэрцитивного поля выходит на участок насыщения при $h_C = 1$, когда $h_C(T_{\text{red}})$ при $T_{\text{red}} \neq 0$ близка, но немного меньше единицы. На участке насыщения величины $h_C(T_{\text{red}})$ перемагничивание также происходит скачком.

В широком интервале температур, более высоких, чем $T_{\text{red}}^{(b)}$, температурная зависимость коэрцитивной силы $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}})$, рассчитанная для величин $h_{\text{exch}} \sim 1$ или $h_{\text{exch}} > 1$, имеет линейный ход, хотя и с некоторым его «затягиванием» при h_C , приближающимся к нулю. При малых величинах h_{exch} , когда температура СФМ упорядочения мало отличается от температуры блокировки, линейный участок в температурной зависимости $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}})$ в интервале температур $T_{\text{red}}^{(b)} < T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{SF}$ не наблюдается: доминирует участок «затягивания».

На участке насыщения коэрцитивной силы, когда $h_C(\sqrt{T_{\text{red}}}) \rightarrow 1$, перемагничивание ансамбля связано с потерей устойчивости направления вектором среднего магнитного момента частиц. В этом случае величина коэрцитивной силы равна критическому полю анизотропии (5), $h_C = h_{\text{cr}}$, а внешнее поле h_{exter} , при котором происходит этот скачок в намагничивании, равно $\pm h_{\text{cr}}$. Это приводит к потере устойчивости ориентации вектора среднего магнитного момента частиц. Обменное поле, поворачиваясь к направлению внешнего, переводит частицы к новому, более выгодному в магнитном поле состоянию. Величину наибольшей температуры, при которой коэрцитивная сила равна $h_C = h_{\text{cr}}$, обозначим $T_{\text{red}}^{(\text{cross})}$. Насыщение величины коэрцитивной силы происходит при $T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{(\text{cross})}$. Величина критической температуры $T_{\text{red}}^{(\text{cross})}$ зависит от h_{exch} .

Для температур $T_{\text{red}}^{(\text{cross})} < T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{SF}$ коэрцитивность перемагничивания связана с индуцируемым магнитным полем скачком среднего момента, направленного противоположно полю, к новому направлению вдоль поля. Этот скачок в намагничивании происходит в магнитном поле $h_{\text{exter}} = \pm h_C < \pm h_{\text{cr}}$, т.е. магнитное поле в точке скачка оказывается меньше величины критического поля анизотропии частиц. При $T_{\text{red}}^{(\text{cross})} < T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{SF}$ перемагничивание в точках $h_{\text{exter}} = \pm h_C < \pm h_{\text{cr}}$ проис-

ходит потому, что в этих точках происходит полная потеря устойчивости среднего вектора магнитных моментов частиц. При такой полной потере устойчивости СФМ фазы каждый из магнитных моментов частиц может самостоятельно изменить свое направление.

Перемагничивание ансамбля частиц при $T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{(SF)}$ в точках $h_{\text{exter}} = \pm h_C$ в блокированном состоянии при $T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{(b)}$ и при насыщении коэрцитивной силы имеет почти прямоугольные петли гистерезиса.

Как видно на рис. 2, кривые $M_{\text{red}}(h_{\text{exter}})$ при высоких температурах ($T_{\text{red}} = 1, 2-1, 4$) становятся более гладкими и в большей степени начинают соответствовать равновесному, ланжевеновскому намагничиванию, с небольшим гистерезисом без скачка среднего момента в точках $h_{\text{exter}} = \pm h_C$, в которых величина производной $dM_{\text{red}} / dH_{\text{exter}}$ остается конечной. Отчасти эта неравновесность обусловлена спецификой расчетов, проводимых с помощью метода МК. Она исчезает при увеличении числа итераций в методе МК и уменьшении шага дискретизации внешнего поля. Это обстоятельство не позволяет нам с помощью произведенных МК расчетов точно определить критическую температуру $T_{\text{red}}^{(SF)}$.

Если пренебречь действием внутриплоскостной анизотропии рассматриваемого нами ансамбля частиц, когда магнитные моменты частиц не выходят из легкой плоскости, то величина температуры СФМ упорядочения должна быть равна [14]

$$T_{SF} = \frac{H_{\text{exch}} M}{2k} \text{ или } T_{\text{red}}^{(SF)} = \frac{h_{\text{exch}}}{2}. \quad (7)$$

Из МК вычислений зависимостей $h_C(T_{\text{red}})$, проведенных при различных величинах обменных полей, нами была построена температурная зависимость $T_{\text{red}}^{(SF)}(h_{\text{exch}})$, ход которой показан на рис. 4. Величина $T_{\text{red}}^{(SF)}$ определялась для каждой зависимости, как значение T_{red} в точке пересечения асимптоты к линейному участку возрастания $h_C(T_{\text{red}})$ с осью абсцисс.

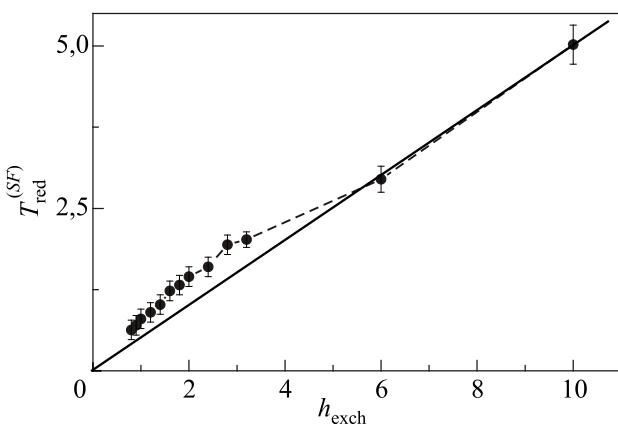


Рис. 4. Зависимость температуры СФМ упорядочения $T_{\text{red}}^{(SF)}(h_{\text{exch}})$ от величины обменного поля. Сплошной прямой обозначена зависимость (7).

При больших значениях обменного поля, когда внутриплоскостной осевой анизотропией можно пренебречь, зависимость (7) выполняется (см. рис. 4). Когда же величина обменного поля становится сопоставимой с полем анизотропии, то для векторов магнитных моментов частиц преимущественным будет направление вдоль легкой оси, лежащей в легкой плоскости. Такое ориентирование магнитных моментов частиц внутриплоскостной анизотропией уменьшит степень беспорядка в системе и должно сопровождаться увеличением температуры СФМ упорядочения. Обсуждаемое изменение температуры СФМ упорядочения за счет влияния одночастичной анизотропии должно быть подобно изменению температуры Кюри в ферромагнетиках с сильной одноионной анизотропией [24, 25].

Если внутриплоскостная анизотропия много больше межчастичного обмена, то $T_{\text{red}}^{(SF)} = h_{\text{exch}}$ [14]. Однако в наших расчетах мы не можем проверить увеличение критической температуры такого типа. Это связано с тем, что вблизи температуры блокировки и ниже ее гистерезис определяется неелевской релаксацией, а не критическим полем устойчивости СФМ фазы как в сильных обменных полях.

Зависимость от величины обменного поля другой критической температуры $T_{\text{red}}^{(\text{cross})}(h_{\text{exch}})$, ниже которой коэрцитивная сила равна критическому полю потери устойчивости направления средним магнитным моментом частиц, показана на рис. 5. На рис. 5 видно, что при $h_{\text{exch}} < 1$ величина критической температуры $T_{\text{red}}^{(\text{cross})}$ изменяется относительно слабо, в пределах $0 < T_{\text{red}}^{(\text{cross})} < 0,08$. Для $h_{\text{exch}} > 1$ изменения $T_{\text{red}}^{(\text{cross})}$ более существенны, и она почти линейно зависит от величины поля межчастичного обменного взаимодействия. Понятно, что в пределе $h_{\text{exch}} \rightarrow \infty$ величина $T_{\text{red}}^{(\text{cross})}$ будет стремиться к $T_{\text{red}}^{(SF)}$.

Согласно формуле Нееля–Броуна (6), коэрцитивная сила ансамбля невзаимодействующих стонер–вольфар-

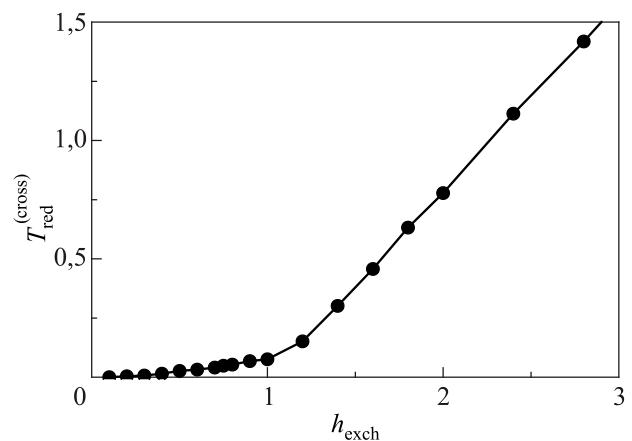


Рис. 5. Зависимость температуры $T_{\text{red}}^{(\text{cross})}$ от величины нормированного межчастичного обменного поля h_{exch} .

товских частиц должна возрастать, достигая максимума при $T_{\text{red}} = 0$. Причем скорость роста величины коэрцитивной силы, согласно этой формуле, должна возрастать по мере понижения температуры. Очень часто в экспериментах оказывается, что при низких температурах в ансамбле наночастиц имеются отклонения в ходе температурной зависимости коэрцитивной силы от корня квадратного из температуры, как в формуле (6). В результате ускоренного возрастания коэрцитивной силы при $T_{\text{red}} \rightarrow 0$ не наблюдается [26,27]. Как показано выше, одной из причин этого может быть нерелаксационный механизм перемагничивания взаимодействующих между собой частиц.

5. Выводы

В настоящей работе с помощью метода МК изучено намагничивание ансамбля СВ частиц. При проведении расчетов алгоритм МК был дополнен процедурой опрокидывания магнитных моментов частиц при достижении внешним полем величины критического поля. Это дополнение позволило существенно сократить время вычислений и вычислительный ресурс, сохранив при расчете петель гистерезиса учет неелевской релаксации и неравновесности, обусловленной образованием СФМ состояния. Неелевская релаксация оказывает существенное влияние на коэрцитивность ансамбля, когда поле анизотропии частиц не превосходит обменное поле межчастичного взаимодействия.

Из расчетов также получено, что при низких температурах в ансамбле обменно-взаимодействующих СВ частиц коэрцитивная сила определяется потерей устойчивости направления вектором среднего магнитного момента частиц. При низкотемпературном насыщении величина коэрцитивной силы равна критическому полю анизотропии, и поэтому вектор обменного поля может изменять свое направление. При его опрокидывании ансамбль переходит к новому состоянию с меньшей энергией.

В области температур более высоких, но ниже температуры СФМ упорядочения, перемагничивание ансамбля происходит в критическом поле полной потери устойчивости СФМ состояния. В этом случае величина критического поля потери устойчивости СФМ состояния меньше критического поля анизотропии, которое не позволяет вращаться обменному полу.

Оказалось, что даже в случае, когда обменное поле многократно превосходит поле анизотропии, коэрцитивная сила на участке $T_{\text{red}}^{(b)} < T_{\text{red}} < T_{\text{red}}^{(SF)}$, возникающая при образовании СФМ состояния, линейно зависит от корня квадратного из температуры. Эта зависимость подобна формуле Нееля–Броуна, но не содержит характерной температуры блокировки, зависящей от времени измерения.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта № 7/16-Н программы НАН Украины «Фундаментальные проблемы создания новых наноматериалов и нанотехнологий».

1. L. Neel, *Ann. Geophys.* **5**, 99 (1949).
2. W.F. Brown, *Phys. Rev.* **130**, 1677 (1963).
3. J.L. Dormann, D. Fiorani, and E. Tronc, *Adv. Chem. Phys.* **98**, 283 (1997).
4. S. Morup and G. Christiansen, *J. Appl. Phys.* **73**, 6955 (1993).
5. A.A. Timopheev, S.M. Ryabchenko, V.M. Kalita, A.F. Lozenko, P.A. Trotsenko, V.A. Stephanovich, A.M. Grishin, and M. Munakata, *J. Appl. Phys.* **105**, 083905 (2009).
6. S. Bedanta, T. Eimuller, W. Kleemann, J. Rhensius, F. Stromberg, E. Amaladass, S. Cardoso, and P.P. Freitas, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 10 (2007).
7. S. Bedanta and W. Kleemann, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42**, 013001 (2009).
8. I.M. Mryglod and V.V. Sokolov, *Ukr. J. Phys.* **54**, 501 (2009).
9. S.M. Ryabchenko, A.A. Timopheev, V.M. Kalita, A.F. Lozenko, P.A. Trotsenko, V.A. Stephanovich, and M. Munakata, *Fiz. Nizk. Temp.* **36**, 861 (2010) [*Low Temp. Phys.* **36**, 682 (2010)].
10. К.П. Белов, *Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках*, Наука, Москва (1979).
11. L.D. Landau, L.P. Pitaevskii, and E.M. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Media, Second Edition: Volume 8 (Course of Theoretical Physics)*, Elsevier, Oxford, UK (1984).
12. V.G. Baryakhtar, I.N. Vitebskii, and D.N. Yablonskii, *Fiz. Tverd. Tela* **19**, 2135 (1977).
13. G.Y. Lavanov, V.M. Kalita, and V.M. Loktev, *Fiz. Nizk. Temp.* **40**, 1053 (2014) [*Low Temp. Phys.* **40**, 823 (2014)].
14. A.A. Timopheev, V.M. Kalita, S.M. Ryabchenko, A.F. Lozenko, P.A. Trotsenko, A.V. Los, and M. Munakata, *J. Appl. Phys.* **108**, 053902 (2010).
15. A.A. Timopheev, V.M. Kalita, and S.M. Ryabchenko, *Fiz. Nizk. Temp.* **34**, 560 (2008) [*Low Temp. Phys.* **34**, 446 (2008)].
16. В.М. Замалин, Г.Э. Норман, В.С. Филипов, *Метод Монте-Карло в статистической термодинамике* Наука, Москва (1977).
17. G.E. Astrakharchik, *Thesis of the PhD dissertation*, Institute of Spectroscopy RAS, Troitsk, Russian Federation (2005).
18. A.A. Timopheev and S.M. Ryabchenko, *Ukr. J. Phys.* **53**, 261 (2008).
19. K.N. Trohidou and J.A. Blackman, *Phys. Rev. B* **41**, 9345 (1990).
20. E.F. Hanriques, V.B. Henriques, and S.R. Salinas, *Phys. Rev. B* **51**, 8621 (1995).
21. D. Dimitrov and G. Wysin, *Phys. Rev. B* **54**, 9237 (1996).
22. R. Brinzaanik, P. Jensen, and K. Bennemann, *Phys. Rev. B* **68**, 1 (2003).
23. Y.C. Chen, *Phys. Rev. B* **57**, 5009 (1998).

24. А.К. Звездин, В.М. Матвеев, А.А. Мухин, А.И. Попов, *Редкоземельные ионы в магнито-упорядоченных кристаллах*, Наука, Москва (1985).
25. V.M. Kalita and V.M. Loktev, *Phys. Solid State* **45**, 1523 (2003).
26. R. Costo, V. Bello, C. Robic, M. Port, J.F. Marco, M. Puerto Morales, and S. Veintemillas-Verdaguer, *Langmuir* **28**, 178 (2012).
27. L. Peng, Q.H. Yang, H.W. Zhang, Y.Q. Song, and J. Shen, *J. Magn. Magn. Mater.* **321**, 624 (2009).

**Monte Carlo calculation of the coercive force
and phase transitions in the ensemble
of Stoner-Wohlfarth particles with exchange interaction**

V.M. Kalita, M.M. Kulyk, and S.M. Ryabchenko

The magnetization of the ensemble of Stoner-Wohlfarth particles with ferromagnetic-like interparticle interaction was investigated with Monte Carlo (MC) method. The modification of MC calculation procedure, which accelerates the calculations, was proposed. The magnetization of the ensemble at different temperatures and different ratio of exchange field of the interparticle interaction to the uniaxial anisotropy

field of the particles was investigated. It was shown, that consideration of Neel relaxation has a significant effect on the coercive properties of the ensemble, if the interparticle exchange field is not greater than the anisotropy field of the particles. It was also found, that the low temperature properties of coercive exchange-interacting Stoner-Wohlfarth particles are associated with the loss of stability of the orientation vector of the average magnetic moment of the particles. At high temperatures, the coercivity of the ensemble of particles is associated with complete loss of stability of superferromagnetic state. The critical temperature and critical field of the ensemble of exchange-coupled Stoner-Wohlfarth particles were analyzed.

PACS: 02.50.Ng Distribution theory and Monte Carlo studies;

75.75.-c Magnetic properties of nanostructures;

74.62.-c Transition temperature variations, phase diagrams;

75.20.-g Diamagnetism, paramagnetism, and superparamagnetism.

Keywords: Monte Carlo simulation, mean field, superferromagnetism, blocked state, exchange interaction.