

05,11

## Фаза Имри—Ма в нанокристаллическом ферромагнетике

© А.А. Берзин<sup>1</sup>, А.И. Морозов<sup>2</sup>, А.С. Сигов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Московский технологический университет (МИРЭА),  
Москва, Россия

<sup>2</sup> Московский физико-технический институт (государственный университет),  
Долгопрудный, Россия

E-mail: mor-alexandr@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 28 февраля 2018 г.  
В окончательной редакции 13 марта 2018 г.)

Изучена возможность возникновения неупорядоченного состояния Имри—Ма, индуцированного флуктуациями направления легкой оси анизотропии в нанокристаллическом образце для случая слабого обменного взаимодействия между кристаллитами. Получена фазовая диаграмма системы в переменных „характерный размер кристаллита—обменный интеграл межкристаллитного взаимодействия“. Сделаны оценки характерной величины статистических флуктуаций кристаллографической анизотропии и найдены зависимости коэрцитивного поля от размера кристаллитов для систем разной пространственной размерности.

Работа поддержана Минобрнауки России (госзадание, проект № 8.1183.2017 ПЧ).

DOI: 10.21883/FTT.2018.09.46385.050

### 1. Введение

В работе [1] была развита теория случайной анизотропии для аморфных ферромагнетиков, в которых анизотропия типа „легкая ось“ изменяется случайным образом на структурной корреляционной длине  $D$ .

Статистические флуктуации анизотропии на масштабе  $L \gg D$  приводят к невыгодности однородного ферромагнитного состояния в пространстве размерности  $d < 4$  и возникновению неупорядоченного состояния, в котором направление вектора намагниченности следует за локальным направлением легкой оси. Это происходит в полном соответствии с аргументами Имри и Ма [2], сформулированными для систем, содержащих дефекты типа „случайное локальное поле“. На полную аналогию между этим состоянием и состоянием Имри—Ма указывалось в работе [3].

Герцер [4] применил теорию случайной анизотропии к нанокристаллическим ферромагнетикам, в которых роль структурной корреляционной длины играет характерный размер кристаллита  $R$ .

Полученная оценка для выигрыша объемной плотности энергии  $w$  неоднородного состояния, которое в дальнейшем будем называть фазой Имри—Ма, по сравнению с энергией упорядоченного состояния была использована в [1,4] для оценки коэрцитивного поля согласно формуле

$$H_c \sim \frac{|w|}{M_s}, \quad (1)$$

где  $M_s$  — величина намагниченности насыщения. На основе этой оценки в [4] была получена степенная зависимость коэрцитивного поля от размера кристаллита  $H_c \propto R^6$ .

В монографии [5] указывается, что в ряде сплавов наблюдается степенная зависимость коэрцитивного по-

ля от размера кристаллита с меньшим показателем:  $H_c \propto R^3$ . Для ее объяснения в работах [6,7] была предложена модель, в которой предполагалось наличие как случайной анизотропии, так и однородной по объему образца одноосной анизотропии, намного превосходящей случайную. Величина коэрцитивного поля определяется суммарной энергией анизотропии, поэтому в данном случае слагаемое в  $H_c$ , пропорциональное  $R^3$ , должно быть малой добавкой к постоянной величине. Это означает, что предложенная модель противоречит экспериментальным данным, свидетельствующим об изменении коэрцитивного поля на несколько порядков при изменении размера кристаллитов [8,9].

В данной работе рассматривается случайная анизотропия в нанокристаллическом ферромагнетике, у которого обменное взаимодействие между кристаллитами намного слабее, чем в объеме кристаллитов. Это может быть связано как со структурой границ (наличие аморфной фазы), так и с различием химического состава в объеме и в граничных областях кристаллитов. Будут рассмотрены ферромагнетики с высоким фактором качества, для которых кристаллографическая анизотропия типа „легкая ось“ намного превосходит анизотропию формы, которой в дальнейшем будем пренебрегать.

Будет показано, что в объемных образцах таких ферромагнетиков коэрцитивное поле пропорционально кубу размера кристаллита:  $H_c \propto R^3$ .

### 2. Энергия системы спинов

Пусть ферромагнитное обменное взаимодействие ближайших друг к другу единичных классических спинов (их модули могут быть включены в соответствующие константы) описывается обменным интегралом  $J_0$ , а об-

менное взаимодействие ближайших друг к другу спинов, принадлежащих соседним кристаллитам, — обменным интегралом  $\tilde{J}$ .

Энергия одноионной анизотропии имеет вид

$$W_{an} = -\frac{1}{2} K_0 \sum_{\alpha} \sum_{i \in V_{\alpha}} (s_{i,\alpha} \mathbf{e}_{\alpha})^2, \quad (2)$$

где  $K_0$  — константа кристаллографической анизотропии в объеме кристаллита,  $s_{i,\alpha}$  —  $i$ -й спин, принадлежащий кристаллиту под номером  $\alpha$ ,  $V_{\alpha}$  — объем этого кристаллита,  $\mathbf{e}_{\alpha}$  — единичный вектор, задающий направление легкой оси в данном кристаллите.

Толщина доменной стенки (блоховской, неелевской или гибридной) и ее поверхностное натяжение по порядку величины равны

$$\Delta \sim b \sqrt{\frac{J_0}{K_0}}, \quad (3)$$

$$\varepsilon \sim b^{-2} \sqrt{J_0 K_0}, \quad (4)$$

где  $b$  — межатомное расстояние.

Рассмотрим поведение системы на основе предложенной модели.

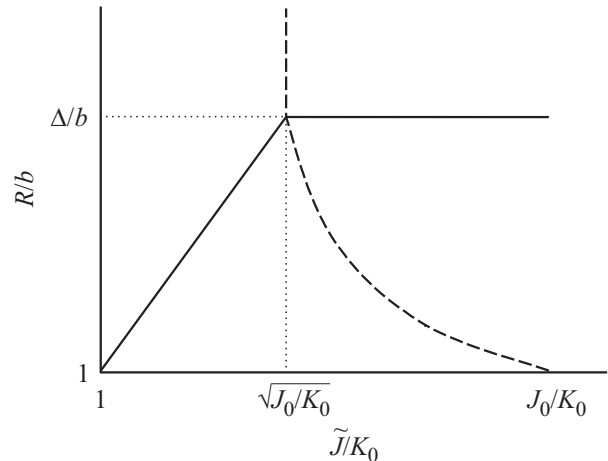
### 3. Область коллективного поведения намагниченностей кристаллитов

В области больших размеров кристаллитов намагниченность в объеме каждого из них параллельна легкой оси данного кристаллита (индивидуальное поведение намагниченностей кристаллитов). При этом дальний порядок на размере  $L \gg R$  отсутствует. Если обменное взаимодействие между кристаллитами того же порядка, что и в объеме кристаллита, то на границах между кристаллитами формируются доменные стенки. Следовательно, критическим значением размера кристаллита  $R_{cr}$  является толщина доменной стенки  $\Delta$ . При  $R \ll R_{cr}$  доменные стенки на границах между кристаллитами не могут сформироваться, и имеет место коллективное поведение намагниченностей нанокристаллитов.

В случае слабой связи между кристаллитами при  $\tilde{J} \ll \sqrt{J_0 K_0}$  энергетически более выгодным является разворот намагниченности на атомном масштабе  $b \ll \Delta$  в зазоре между кристаллитами. Критический размер  $R_{cr}$  находится из условия равенства энергии анизотропии в объеме кристаллита  $K_0(R/b)^3$  и энергии неоднородности на границе кристаллита  $\tilde{J}(R/b)^2$

$$R_{cr} \sim \frac{\tilde{J}b}{K_0} \sim \frac{\tilde{J}}{\sqrt{J_0 K_0}} \Delta \ll \Delta. \quad (5)$$

При большой энергии анизотропии, когда  $K_0 R \gg \tilde{J}b$ , имеет место индивидуальное, а в противоположном случае — коллективное поведение намагниченностей кристаллитов.



Фазовая диаграмма нанокристаллической системы в переменных „характерный размер кристаллита—обменный интеграл межкуристаллитного взаимодействия“. Сплошная линия — граница между областями индивидуального (выше линии) и коллективного поведения кристаллитов. Пунктирная линия разделяет области сильного (правее линии) и слабого взаимодействия кристаллитов.

Фазовая диаграмма системы в переменных „характерный размер кристаллита  $R$ —обменный интеграл межкуристаллитного взаимодействия“ приведена на рисунке. Граница между индивидуальным и коллективным поведением намагниченностей кристаллитов изображена сплошной линией. Выше нее наблюдается индивидуальное, а ниже — коллективное поведение. Переход от одного типа поведения к другому происходит непрерывно по мере изменения параметров системы.

### 4. Энергия неоднородности и механизмы разворота намагниченности

Характерная величина константы кристаллографической анизотропии типа „легкая ось“, возникающей за счет статистических флуктуаций в области с характерным линейным размером  $L \gg R$  составляет величину порядка [1,4]:

$$\langle K \rangle \sim \frac{K_0}{\sqrt{N}} \sim K_0 \left( \frac{R}{L} \right)^{d/2}, \quad (6)$$

где  $N \sim (L/R)^d$  — число кристаллитов в указанной области, а  $d$  — размерность пространства. Если намагниченность следует за флуктуациями легкой оси анизотропии, то возникает отрицательный вклад в объемную плотность энергии. По порядку величины этот вклад составляет

$$w_{an} \sim -\frac{K_0}{b^d} \left( \frac{R}{L} \right)^{d/2}. \quad (7)$$

Оценим положительный вклад в объемную плотность энергии, возникающий при таком поведении намагничен-

ности вследствие неоднородности параметра порядка. Если разворот намагниченности происходит непрерывно на масштабе  $L$  (первый механизм разворота), то по порядку величины

$$w_{ex} \sim \frac{J_0}{b^{d-2}L^2}. \quad (8)$$

Действительно, градиент угла разворота вектора намагниченности  $|\nabla\theta| \sim L^{-1}$ , так как на длине  $L$  происходит разворот на угол порядка радиана, а  $w_{ex} \sim J_0(\nabla\theta)^2 b^{2-d}$ . Легко видеть, что при  $d < 4$  выигрыш в энергии анизотропии превосходит в области больших значений  $L$  проигрыш в обменной энергии, обусловленный неоднородностью параметра порядка, и фаза Имри–Ма является основным состоянием системы классических спинов.

Разворот намагниченности может происходить „ступенчато“ путем последовательных скачков на границах кристаллитов (второй механизм разворота). Число таких ступеней на длине  $L$  равно  $L/R$ , а угол разворота на каждой границе кристаллитов порядка  $R/L$ . Поскольку ширина области контакта кристаллитов атомного масштаба, то  $|\nabla\theta| \sim R/Lb$ , а объемная плотность энергии неоднородности в области контакта

$$w_{ex}^{(1)} \sim \frac{\tilde{J}R^2}{b^dL^2}. \quad (9)$$

Относительная доля контактных областей порядка  $b/R$ . В итоге средняя объемная плотность энергии неоднородности

$$w_{ex} \sim \frac{\tilde{J}R}{b^{d-1}L^2}. \quad (10)$$

Сравнивая выражения (8) и (10), находим, что первый механизм разворота является преобладающим при  $\tilde{J}R \gg J_0b$ , а второй — при обратном соотношении.

Граница между областями, в которых преобладает один из механизмов разворота, изображена на рисунке пунктирной гиперболой  $\frac{R}{b} = \left(\frac{J_0}{K_0}\right)\left(\frac{\tilde{J}}{K_0}\right)^{-1}$ . Она является продолжением прямой  $\frac{\tilde{J}}{K_0} = \sqrt{\frac{J_0}{K_0}}$ , разграничивающей два механизма разворота намагниченности на границах крупных кристаллитов. Переход от одного механизма к другому происходит непрерывным образом по мере изменения параметров.

а) Первый механизм разворота. Минимизируя по  $L$  сумму энергий (7) и (9), находим оптимальный масштаб  $L^*$  и соответствующий выигрыш в объемной плотности энергии по сравнению с однородно намагниченным состоянием, впервые полученные для произвольной размерности пространства в работе [10]:

$$L^* \sim \Delta \left(\frac{\Delta}{R}\right)^{\frac{d}{4-d}}, \quad (11)$$

$$w^* \sim -\frac{K_0}{b^d} \left(\frac{R}{\Delta}\right)^{\frac{2d}{4-d}}. \quad (12)$$

б) Второй механизм разворота. Аналогично, минимизируя по  $L$  сумму энергий (7) и (10), находим

$$\tilde{L}^* \sim \left(\frac{\tilde{J}b}{K_0}\right)^{\frac{2}{4-d}} R^{\frac{2-d}{4-d}}, \quad (13)$$

$$\tilde{w}^* \sim -\frac{K_0}{b^d} \left(\frac{RK_0}{b\tilde{J}}\right)^{\frac{d}{4-d}}. \quad (14)$$

Существенное отличие зависимостей, полученных для первого и второго механизмов разворота, обуславливает качественно разное поведение системы в областях слабого и сильного взаимодействия кристаллитов.

## 5. Коэрцитивное поле

Легко видеть, что в области слабого взаимодействия кристаллитов зависимость коэрцитивного поля от размера кристаллита существенно отличается от таковой в области их сильного взаимодействия. Вместо зависимостей  $H_c \propto R^{2/3}$ ,  $H_c \propto R^2$ ,  $H_c \propto R^6$ , полученных в [10] в приближении сильного взаимодействия кристаллитов для одномерных, двумерных и трехмерных структур, в области слабого взаимодействия кристаллитов получаются соответственно зависимости  $H_c \propto R^{1/3}$ ,  $H_c \propto R$ ,  $H_c \propto R^3$ . Таким образом, наблюдаемая в эксперименте [5,8,9] зависимость  $H_c \propto R^3$  объясняется слабой связью между кристаллитами. При этом в рассматриваемой модели, в отличие от работ [6,7], отсутствует однородная по объему образца сильная одноосная анизотропия. Это позволяет получить существенное изменение коэрцитивного поля с изменением размера кристаллита.

Зависимость  $H_c \propto \tilde{w}^* \propto \tilde{J}^{-\frac{d}{4-d}}$  объясняет рост коэрцитивного поля с увеличением температуры, обнаруженный в работе [11]. Действительно, величина  $\tilde{J}$  падает по мере приближения к температуре Кюри аморфной фазы, расположенной в зазоре между кристаллитами. Рост  $H_c$  продолжается вплоть до нарушения условия  $K_0R \ll \tilde{J}b$  и перехода в фазу индивидуального поведения намагниченностей кристаллитов.

## 6. Степень текстурированности

Приведенная на рисунке фазовая диаграмма справедлива в отсутствие текстурированности образцов, то есть в отсутствие анизотропии в распределении направлений легких осей в пространстве параметра порядка. Как показано в работах [12,13], наличие преимущественного направления и возникновение глобальной (средней) анизотропии типа „легкая ось“ приводит к подавлению состояния Имри–Ма и восстановлению дальнего порядка в случае, когда она превосходит критическое значение [14].

Аналогично [12] можно оценить критическую степень  $\varepsilon$  асимметрии распределения  $\rho(\mathbf{e}_\alpha)$  направлений легких осей в пространстве параметра порядка, при

превышении которой состояние Имри–Ма становится энергетически невыгодным. Пусть  $\rho(\mathbf{e}_\alpha)$  задается выражением

$$\rho(\mathbf{e}_\alpha) = A[(1 + \varepsilon)e_{\alpha 1}^2 + \sum_{i=2}^n e_{\alpha i}^2], \quad (15)$$

где  $n$  — число компонент параметра порядка, а  $e_{\alpha i}$  — проекция вектора  $\mathbf{e}_\alpha$  на  $i$ -ю ось в пространстве параметра порядка. Наличие асимметрии с  $\varepsilon > 0$  понижает энергию состояния с однородной намагниченностью, параллельной оси 1.

Критическое значение  $\varepsilon$  находится из равенства энергии такого состояния и состояния Имри–Ма. В результате получаем

$$\varepsilon_{cr} \sim \left(\frac{R}{\Delta}\right)^{\frac{2d}{4-d}}, \quad \tilde{J}R \gg J_0b, \quad (16)$$

$$\varepsilon_{cr} \sim \left(\frac{RK_0}{b\tilde{J}}\right)^{\frac{d}{4-d}}, \quad \tilde{J}R \ll J_0b. \quad (17)$$

Следует отметить, что точно такое же критическое значение имеет отношение объемной плотности энергии анизотропии формы к величине  $K_0/b^d$ .

При  $R = 0.1\Delta$  из (16) получаем  $\varepsilon_{cr} = 10^{-6}$  для  $d = 3$  и  $\varepsilon_{cr} = 10^{-2}$  для  $d = 2$ . Для  $RK_0 = 0.1b\tilde{J}$  находим из (17):  $\varepsilon_{cr} = 10^{-3}$  для  $d = 3$  и  $\varepsilon_{cr} = 10^{-1}$  для  $d = 2$ . Легко видеть, что наименее жесткие требования к степени текстурированности имеют место в двумерных образцах со слабым взаимодействием кристаллитов.

В случае тонкой ферромагнитной пленки на немагнитной подложке последняя создает поверхностную анизотропию, а малая величина аспектного отношения собственно пленки — заметную анизотропию формы. Поэтому состояние Имри–Ма следует изучать на ферромагнитных пленках, текстурированных так, чтобы кристаллографические легкие оси кристаллитов были изотропно распределены в плоскости пленки. Подложку следует выбирать аморфной, чтобы она не создавала анизотропии для легкой оси кристаллитов в плоскости пленки.

## 7. Заключение

Таким образом, теория случайной анизотропии, развитая ранее в [4] для случая сильного взаимодействия кристаллитов, распространена на случай их слабого взаимодействия.

Для фазовой диаграммы „характерный размер кристаллита–обменный интеграл межкристаллитного взаимодействия“ найдены границы между индивидуальным и коллективным поведением намагниченностей кристаллитов и между режимами их сильного и слабого взаимодействия.

Рассчитаны зависимости коэрцитивного поля от размера кристаллитов в области их слабого взаимодействия для систем разной пространственной размерности.

В случае трехмерной системы теоретическая зависимость совпадает с экспериментальными зависимостями, полученными для ряда нанокристаллических ферромагнитных сплавов.

Получено ограничение на степень текстурированности образцов, при которой можно наблюдать состояние Имри–Ма. Показано, что наиболее перспективными для экспериментального изучения являются квазидвумерные образцы.

Авторы благодарны О.Г. Удалову, обратившему их внимание на возможность реализации состояния Имри–Ма в нанокристаллах.

## Список литературы

- [1] R. Alben, J.J. Becker, M.C. Chi. J. Appl. Phys. **49**, 1853 (1978).
- [2] Y. Imry, S.-K. Ma. Phys. Rev. Lett. **35**, 1399 (1975).
- [3] Р.С. Исхаков, В.А. Игнатченко, С.В. Комогорцев, А.Д. Балаев. Письма в ЖЭТФ **78**, 1142 (2003).
- [4] G. Herzer. IEEE Trans. Magn. **25**, 3327 (1989); **26**, 1397 (1990).
- [5] А.М. Глезер, Н.А. Шурыгина. Аморфно-нанокристаллические сплавы. Физматлит, М. (2013). 452 с.
- [6] K. Suzuki, J.M. Cadogan. Phys. Rev. B **58**, 2730 (1998).
- [7] K. Suzuki, N. Ito, J.S. Garitaonandia, J.D. Cashion, G. Herzer. J. Non-Cryst. Solids **354**, 5089 (2008).
- [8] Y. Fujii, H. Fujita, A. Seki, T. Tomida. J. Appl. Phys. **70**, 6241 (1991).
- [9] D. Yao, S. Ge, X. Zhou, H. Zuo. J. Appl. Phys. **107**, 073902 (2010).
- [10] G. Herzer. Mater. Sci. Eng. A **133**, 1 (1991).
- [11] A. Hernando, T. Kulik. Phys. Rev. B **49**, 7064 (1994).
- [12] А.А. Берзин, А.И. Морозов, А.С. Сигов. ФТТ **58**, 1947 (2016).
- [13] А.А. Берзин, А.И. Морозов, А.С. Сигов. ФТТ **59**, 2420 (2017).
- [14] А.И. Морозов, А.С. Сигов. Письма в ЖЭТФ **90**, 818 (2009).

Редактор Т.Н. Василевская