УДК 537.622.5

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

ИССЛЕДОВАНИЕ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА В МАССИВЕ ФЕРРОМАГНИТНЫХ НАНОЧАСТИЦ С ДИПОЛЬ-ДИПОЛЬНЫМ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕМ МЕТОДОМ КОМПЬЮТЕРНОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

© 2022 г. С. В. Белим^{а, *}, О. В. Лях^а

^аОмский государственный технический университет, пр. Мира, 11, Омск, 644050 Россия

*e-mail: sbelim@mail.ru Поступила в редакцию 23.06.2022 г. После доработки 18.09.2022 г. Принята к публикации 28.09.2022 г.

Исследуется упорядочивание двумерного массива ферромагнитных частиц с диполь-дипольным взаимодействием методом компьютерного моделирования. Для компьютерного моделирования используется модель Изинга и кластерный алгоритм Вольфа. Рассматриваются однодоменные частицы. Диполь-дипольное взаимодействие приводит к антиферромагнитному упорядочиванию намагниченностей частиц. Вычислена зависимость температуры антиферромагнитного упорядочивания от интенсивности диполь-дипольного взаимодействия. Показано, что эта зависимость носит логарифмический характер. Исследовано поведение системы во внешнем магнитном поле. Для массива ферромагнитных частиц, как и для непрерывных систем, существует критическое значение напряженности магнитного поля, подавляющее антиферромагнитный порядок. Показано, что зависимость критического значения напряженности магнитного поля от интенсивности диполь-дипольности магнитного поля.

Ключевые слова: массив наночастиц, диполь-дипольное взаимодействие, антиферромагнитное упорядочивание, фазовый переход

DOI: 10.31857/S0015323022600733

введение

Двумерные массивы ферромагнитных наночастицы представляют собой метаматериалы, получаемые искусственным путем. Такие системы могут быть получены на немагнитной подложке различными способами. Один из способов состоит в осаждении наночастиц из жидкой среды на структурированную подложку [1, 2]. Изменяя структуру подложки, можно контролировать взаимное расположение частиц и, таким образом, влиять на магнитные свойства системы. Второй подход состоит в литографическом разбиении тонкой ферромагнитной пленки на прямоугольные области одинакового размера [3, 4].

Упорядоченный массив ферромагнитных наночастиц обладает магнитными свойствами схожими с обычными магнитными материалами [5]. Наночастицы имеют малые размеры, вследствие чего однодоменны. Поэтому при температуре ниже температуры блокировки частицы можно рассматривать как один макроспин. Если все частицы имеют одинаковый размер, то все макроспины имеют одинаковый магнитный момент. Упорядоченный массив наночастиц можно рассматривать как двумерную систему, состоящую из макроспинов, расположенных в узлах квадратной решетки. Магнитное упорядочивание макроспинов происходит за счет их взаимодействия. Магнитный момент отдельно взятой частицы определяется обменным взаимодействием между спинами атомов. Взаимодействие между соседними частицами определяется диполь-дипольными силами.

По аналогии с обычными спиновыми системами можно говорить о фазовых переходах в массиве магнитных наночастиц, как упорядочивание макроспинов. Если макроспины упорядочиваются в одном направлении, то в системе происходит суперферромагнитное упорядочивание. При случайном расположении макроспинов система находится в суперпарамагнитной фазе. Если массив наночастиц разбивается на две вложенные подрешетки с противоположно ориентированными макроспинами, то можно говорить о суперантиферромагнитной фазе.

Упорядочивание макроспинов в двумерном массиве наночастиц наблюдалось экспериментально в



Рис. 1. Геометрия системы.

ряде работ. Гетероструктуры Co/CaF₂/Si(001) при температурах выше 294 К находятся в суперпарамагнитной фазе [5]. При понижении температуры происходит переход в суперферромагнитное состояние. Аналогичные фазовые переходы наблюдались в различных массивах наночастиц: Ge₁Sb₂Te₄ [6], Co/Cu [7], Fe₃O₄ [8].

Суперантиферромагнитное упорядочивание наблюдалось в системах наночастиц, в которых определяющую роль играет диполь-дипольное взаимодействие. Переход в суперантиферромагнитную фазу наблюдался в массиве нанокристаллов Со диаметром 12 нм на углеродных подложках [9]. Диполь-дипольные силы между частицами приводят к коллективному поведению системы при температурах ниже 300 К. Остаточная намагниченность и одноосное поле анизотропии свидетельствуют об изинговском классе универсальности для этой системы. Поведение магнитных наночастиц Fe/Fe₃O₄ на поверхности CoFeB зависит от интенсивности взаимодействия между ними [10]. Эта зависимость была визуализирована методом сравнения изображений атомно-силового и магнитно-силового микроскопов. Массивы ферромагнитных наночастиц ZnO, легированных различными переходными металлами, демонстрируют фазовый переход при комнатных температурах [11–18].

В этой статье проведено исследование суперантиферромагнитного упорядочивания в двумерном массиве кубических ферромагнитных наночастиц методом компьютерного моделирования.

МОДЕЛЬ СИСТЕМЫ

Рассмотрим двумерный массив кубических ферромагнитных наночастиц, расположенных в узлах прямоугольной сетки. Каждая частица имеет размер $d \times d \times d$ атомных спинов. Будем использовать модель Изинга, в которой каждый спин S_i может принимать одно из двух значений (1/2 или –1/2). Модель Изинга применяется для описания систем с легкой осью намагничивания. Внутри частицы взаимодействие между спинами носит обменный характер и задается обменным интегралом J₀. Будем выбирать размеры частиц таким образом, чтобы они оставались однодоменными. Так как расстояние между соседними частицами значительно больше, чем расстояние между атомами в одной частице, то обменные взаимодействие будет слабым. Основную роль во взаимодействии между спинами, расположенными в соседних частицах, будут играть диполь-дипольные силы. Энергию взаимодействия спинов из соседних частиц можно записать в виде:

$$J_{ij}(\vec{r}) = \frac{\left(\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j\right)r^2 - 3\left(\vec{S}_i \cdot \vec{r}\right)\left(\vec{S}_j \cdot \vec{r}\right)}{r^5},$$
 (1)

r — расстояние между соседними частицами, S_i и S_j спины атомов из двух соседних частиц. Будем рассматривать системы с легкой осью намагничивания, перпендикулярной плоскости подложки, на которой расположены частицы. В этом случае направление спина перпендикулярно радиус-вектору, соединяющему частицы. Энергия диполь-дипольного взаимодействия будет положительной:

$$J(r) = \frac{S_1 S_2}{r^2} > 0.$$
 (2)

Следовательно, соседним частицам энергетически выгодно иметь магнитные моменты ориентированные в противоположные стороны. В системе должна наблюдаться суперантиферромагнитная фаза. В этой фазе каждая частица имеет ненулевой магнитный момент, но магнитный момент системы в целом равен нулю.

Геометрия системы представлена на рис. 1.

Гамильтониан такой системы можно записать в следующем виде:

$$H_0 = \sum J_{ij} S_i S_j - \mu_0 h_0 \sum S_i,$$

$$J_{ij} = \begin{cases} -J_0, S_i \in D_k, S_j \in D_k. \\ J(r), \text{ overwise.} \end{cases}$$
(3)

Здесь D_k — частица с номером k, S_i — значение спина в *i*-ом узле, h_0 — напряженность внешнего магнитного поля, μ_0 — магнетон Бора. Суммиро-

 T_N

вание выполняется только по ближайшим соседним спинам. Взаимодействие между соседними частицами слабее, чем между спинами внутри одной частицы, поэтому будет выполняться неравенство $J(r) < J_0$.

Для компьютерного моделирования удобнее пользоваться относительными единицами. Температуру системы T будем измерять в относительных единицах J_0/k_B , где k_B — постоянная Больцмана. Напряженность магнитного поля будем вычислять также в относительных единицах:

$$h = \mu_0 h_0 / J_0 \,. \tag{4}$$

Введем отношение интенсивности диполь-дипольного взаимодействия к обменному интегралу:

$$R = J(r)/J_0. (5)$$

Параметр R определяет связность системы. Значение R = 0 соответствует массиву невзаимодействующих частиц.

Для описания поведения системы введем параметр порядка *m* как шахматную намагниченность для частиц. Пусть намагниченность отдельной частицы с координатами (j, k) равна m_{jk} . Тогда параметр порядка вычисляется по формуле:

$$m = \left(\sum_{j+k=even} m_{ij} - \sum_{j+k=odd} m_{ij}\right) / N.$$
 (6)

В первом слагаемом суммирование выполняется по частицам, сумма координат которых, четная, во втором — нечетная. *N* — общее количество частиц. Данный параметр порядка равен разности намагниченностей двух подрешеток и равен единице в суперантиферромагнитной фазе.

Для исследования фазового перехода был использован кластерный алгоритм Вольфа [19]. Как известно, чистые фазовые переходы второго рода происходят только в бесконечных системах. Для нивелирования влияния конечных размеров системы на результаты расчетов была использована теория конечноразмерного скейлинга [20]. Основная идея этого подхода состоит в рассмотрении систем различного размера и аппроксимации результатов на случай бесконечной системы.

При компьютерном моделировании система частиц располагалась в плоскости ОХҮ. Рассматривались системы размером $L \times L$. L – количество частиц вдоль одной из осей координат. Количество спинов вдоль одной оси равно $L \times d$. Для определения температуры фазового перехода вычислялись куммулянты Биндера четвертого порядка [21]:

$$U_4 = 1 - \frac{\left\langle m^4 \right\rangle}{3 \left\langle m^2 \right\rangle^2}.$$
 (7)

ия будем выщах: (4) диполь-диинтегралу: (5) **Рис. 2.** Графики зависимос

Рис. 2. Графики зависимости температуры фазового перехода T_N от напряженности магнитного поля h при различных значениях R.

Угловые скобки использованы для обозначения усреднения по термодинамическим состояниям. Для вычисления критической температуры используется независимость куммулянтов Биндера от размеров системы в точке фазового перехода. Исходя из этого графики зависимости куммулянтов Биндера от температуры, построенные для систем различного размера, будут пересекаться в одной точке. Точка пересечения графиков соответствует температуре фазового перехода $T_{\rm N}$.

РЕЗУЛЬТАТЫ КОМПЬЮТЕРНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

В компьютерном эксперименте исследовались системы с частицами размером d = 4. Как показал компьютерный эксперимент, при увеличении размеров частиц, они перестают вести себя как однодоменные. Размеры системы изменялись от L = 24 до L = 56 с шагом $\Delta L = 8$. Отношение интенсивности диполь-дипольного взаимодействия между частицами к обменному интегралу внутри частиц изменялось от R = 0.2 до R = 1.0 с шагом $\Delta R = 0.2$. Относительная напряженность внешнего магнитного поля изменялась от h = 0.0 до h = 4.0 с шагом $\Delta h = 0.4$. Графики зависимости температуры фазового перехода T_N от напряженности магнитного поля h при различных значениях R представлены на рис. 2.

Зависимость критической температуры $T_N(R, h)$ от напряженности магнитного поля может быть аппроксимирована соотношением:

$$T_{\rm N}(R,h) = T_0(R) \left(1 - \frac{h^2}{h_{\rm C}^2(R)} \right).$$
(8)

ФИЗИКА МЕТАЛЛОВ И МЕТАЛЛОВЕДЕНИЕ том 123 № 11 2022





Рис. 3. График зависимости T_0 от *R*.

Здесь $T_0(R)$ — температура фазового перехода при нулевом внешнем магнитном поле; $h_C(R)$ — критическая напряженность магнитного поля, при котором происходит подавление антиферромагнитного упорядочивания.

В отсутствии внешнего магнитного поля температура фазового $T_0(R)$ перехода зависит от относительной интенсивности диполь-дипольного взаимодействия между частицами R. График зависимости T_0 от R приведен на рис. 3.

Представленная на графике зависимость подчиняется логарифмическому закону:

$$T_0(R) = 3.84 + 0.62 \ln R. \tag{9}$$

Зависимость критического магнитного поля $h_{\rm C}$ от *R* представлена на рис. 4.

Данная зависимость может быть аппроксимирована линейной функцией:

$$h_{\rm C}(R) = 1.93 + 2.07R.$$
 (10)

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТОВ И ВЫВОДЫ

Моделирование двумерного массива ферромагнитных частиц с диполь-дипольным взаимодействием показало, что в системе происходит антиферромагнитное упорядочивание макроспинов. В целом, система ведет себя аналогично тонкой антиферромагнитной пленке. Система характеризуется температурой перехода из парамагнитной фазы в суперантиферромагниную фазу. Эта температура зависит от интенсивности диполь-дипольного взаимодействия по логарифмическому закону. При совпадении интенсивности диполь-дипольного взаимодействия с интен-



Рис. 4. График зависимости критического магнитного поля h_C от *R*.

сивностью обменного взаимодействия (R = 1) в нулевом внешнем поле (h = 0) температура Нееля совпадает с соответствующим значением для непрерывной пленки $T_N(1, 0) = 3.84$. Данный результат находится в хорошем согласии с экспериментальными данными [22]. Учитывая степенную зависимость энергии диполь-дипольного взаимодействия от расстояния, можно говорить о логарифмической зависимости температуры антиферромагнитного упорядочивания от расстояния между частицами.

Как и для непрерывных систем, внешнее магнитное поле подавляет антиферромагнитный порядок. Существует критическое значение напряженности магнитного поля, при котором ферромагнитное упорядочивание становится энергетически более выгодным. Если энергия диполь-дипольного взаимодействия между частицами равна по величине энергии обменного взаимодействия между спинами внутри частицы (R = 1), то критическое значение магнитного поля совпадает со значением, характерным для непрерывных пленок ($h_{\rm C} = 4.0$) [23]. При увеличении расстояния между частицами уменьшается энергия диполь-дипольного взаимодействия, отвечающего за антиферромагнитное упорядочивание, что приводит к снижению критического магнитного поля. Значение напряженности магнитного поля, начиная с которого подавляется суперантиферромагнетизм, убывает по линейному закону при уменьшении энергии взаимодействия между частицами. Учитывая зависимость энергии диполь-дипольного взаимодействия от расстояния можно говорить об убывании критического магнитного поля с расстоянием между частицами по кубическому закону $(h_C \sim r^{-3}).$

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-07-00053.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Ehrmann A., Blachowicz T. Systematic study of magnetization reversal in square Fe nanodots of varying dimensions in different orientations. // Hyperfine Interactions. 2018. V. 239. P. 48(1)–48(10).
- Claridge S.A., Castleman Jr. A.W., Khanna S.N. et al. Cluster-assembled materials // ACS Nano. 2009. V. 3. № 2. P. 244–255.
- 3. *Guo Y., Du Q., Wang P. et al.* Two-dimensional oxides assembled by M_4 clusters (M = B, Al, Ga, In, Cr, Mo, and Te) // Phys. Rev. Research. 2021. V. 3. P. 043231(1)–043231(8).
- Bista D., Sengupta T., Reber A.C., Khanna S.N. Interfacial magnetism in a fused superatomic cluster [Co₆Se₈(PEt₃)₅]₂ //Nanoscale. 2021. V. 13. P. 15763– 15769.
- Bramwell S. T., Gingras M.J. Spin ice state in frustrated magnetic pyrochlore materials // Science. 2001. V. 294. P. 1495–1501.
- Castelnovo C., Moessner R., Sondhi S.L. Magnetic monopoles in spin ice // Nature. 2008. V. 451. P. 42–45.
- Yumnam G., Guo J., Chen Y. et al. Magnetic charge and geometry confluence for ultra-low forward voltage diode in artificial honeycomb lattice // Mater. Today Phys. 2022. V. 22. P. 100574(1)–100574(7).
- Keswani N., Singh R., Nakajima Y. et al. Accessing lowenergy magnetic microstates in square artificial spin ice vertices of broken symmetry in static magnetic field // Phys. Rev. B. 2020. V. 102. P. 224436(1)–224436(10).
- Gallina D., Pastor G.M. Structural disorder and collective behavior of two-dimensional magnetic nanostructures // Nanomaterials. 2021. V. 11. P. 1392(1)– 1392(23).
- Ming D., Xu L., Liu D. et al. Fabrication and phase transition of long-range-ordered, high-density GST nanoparticle arrays // Nanotechnology. 2008. V. 19. P. 505304(1)–505304(5).
- 11. *Gu E., Hope S., Tselepi M. et al.* Two-dimensional paramagnetic-ferromagnetic phase transition and magnetic

anisotropy in Co(110) epitaxial nanoparticle arrays // Phys. Rev. B. 1999. V. 60. P. 4092–4095.

- Benitez M.J., Mishra D., Szary P. et al. Structural and magnetic characterization of self-assembled iron oxide nanoparticle arrays // J. Phys.: Condens. Matter. 2011. V. 23. P. 126003(1)–126003(12).
- Spasova M., Wiedwald U., Ramchal R. et al. Magnetic properties of arrays of interacting Co nanocrystals // J. Magn. Magn. Mater. 2002. V. 240. P. 40–43.
- Schäffer A.F., Sukhova A., Berakdar J. Size-dependent frequency bands in the ferromagnetic resonance of a Fe-nanocube // J. Magn. Magn. Mater. 2017. V. 438. P. 70–75.
- Morgunov R.B., Koplak O.V., Allayarov R.S. et al. Effect of the stray field of Fe/Fe₃O₄ nanoparticles on the surface of the CoFeB thin films // Appl. Surface Sci. 2020. V. 527. P. 146836(1)–146836(11).
- Ren H., Xiang G. Morphology-dependent room-temperature ferromagnetism in undoped ZnO nanostructures // Nanomaterials. 2021. V. 11. P. 3199(1)-3199(18).
- Gao Y., Hou Q.Y., Liu Y. Effect of Fe Doping and Point Defects (V_O and V_{Sn}) on the Magnetic Properties of SnO₂ // J. Supercond. Nov. Magn. 2019. V. 32. P. 2877–2884.
- Zhang C., Zhou M., Zhang Y. et al. Effects of oxygen vacancy on the magnetic properties of Ni-doped SnO₂ nanoparticles // J Supercond. Nov. Magn. 2019. V. 32. P. 3509–3516.
- Wolff U. Collective Monte Carlo updating for spin systems // Phys. Rev. Letters. 1988. V. 62. P. 361–364.
- Binder K. Critical properties from Monte Carlo coarse graining and renormalization // Phys. Rev. Letters. 1981. V. 47. P. 693–696.
- Landau D.P., Binder K. Phase diagrams and multicritical behavior of a three-dimensional anisotropic Heisenberg antiferromagnet // Phys. Rev. B. 1978. V. 17. P. 2328–2342.
- 22. Vaz C.A.F., Bland J.A.C., Lauhoff G. Magnetism in ultrathin film structures // Reports on Progress in Physics. 2008. V. 71. № 5. P. 056501(1)–056501(78).
- Belim S.V. Investigation of the Effect of Magnetic Field on Surface Phase Transition in Antiferromagnetics by Computer Simulation // J. Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques, 2020. V. 14. № 6. P. 1183–118.