

УДК 519.87

## МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО РЕЛАКСАЦИИ НАМАГНИЧЕННОСТИ В АМОРФНЫХ СПЛАВАХ Re–Tb И Re–Gd

© 2022 г. И. М. Пашуева<sup>1</sup>, А. В. Бондарев<sup>2</sup>, \*, И. Л. Батаронов<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования “Воронежский государственный технический университет”, Воронеж, Россия

<sup>2</sup>Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования “Национальный исследовательский университет “МИЭТ”, Зеленоград, Москва, Россия

\*E-mail: bondarev\_a\_v@mail.ru

Поступила в редакцию 13.12.2021 г.

После доработки 24.12.2021 г.

Принята к публикации 21.01.2022 г.

Методом Монте-Карло исследована релаксация намагниченности после выключения внешнего магнитного поля в моделях аморфных сплавов Re–Tb и Re–Gd, а также чистых аморфных Tb и Gd. Показан различный характер релаксации намагниченности для аморфных сплавов со случайной анизотропией (Re–Tb) и с конкуренцией обменных взаимодействий разных знаков (Re–Gd). В сплавах на основе Tb релаксация намагниченности является двухстадийной, а в сплавах на основе Gd – одностадийной.

DOI: 10.31857/S0367676522050180

### ВВЕДЕНИЕ

Аморфные сплавы (АС) на основе редкоземельных металлов вызывают большой интерес благодаря уникальному сочетанию их физических свойств [1–3]. В частности, экспериментально установлено, что в АС систем Re–Tb и Re–Gd в широком интервале концентраций имеет место пик на температурной зависимости магнитной восприимчивости и необратимость намагниченности, свидетельствующие о переходе из парамагнитного состояния в фазу спинового стекла [4].

На микроскопическом уровне природа спинстекольного и родственных ему состояний недостаточно изучена, что вызывает необходимость компьютерного моделирования магнитных свойств данных материалов. Наиболее эффективным для этих целей является метод Монте-Карло (МК). Метод Монте-Карло широко применяется для моделирования магнитных свойств сложных неупорядоченных магнетиков (см., например, [5–7]).

В данной работе методом Монте-Карло исследована релаксация намагниченности после выключения внешнего магнитного поля в АС Re–Tb и Re–Gd, а также в чистых аморфных Tb и Gd. Сплавы на основе Tb являются типичными представителями магнетиков со случайной анизотропией, в то время как сплавы на основе Gd – представители магнетиков с конкуренцией обменных взаимодействий разного знака.

### МЕТОДИКА МОДЕЛИРОВАНИЯ

Моделирование проводилось по методике, изложенной в работах [8, 9]. Методом молекулярной динамики построены модели атомной структуры АС  $\text{Re}_x\text{Tb}_{100-x}$  ( $x = 20, 29, 49, 59$  и  $91$  ат. %), АС  $\text{Re}_{100-x}\text{Gd}_x$  ( $x = 5-93$  ат. %), а также чистых аморфных тербия и гадолиния. Каждая модель содержала по 100 000 атомов в кубической ячейке с периодическими граничными условиями построены. Межатомное взаимодействие описывалось полиномиальным потенциалом [10].

Методом Монте-Карло в рамках модели Гейзенберга исследовались магнитные свойства построенных моделей. Для описания взаимодействия между магнитными моментами атомов тербия использован модельный гамильтониан [11]:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{ij} (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j) - D \sum_i (\vec{n}_i \cdot \vec{S}_i)^2 - \mu h \sum_i S_i^z, \quad (1)$$

где  $J_{ij}$  – интеграл обменного взаимодействия между спинами с номерами  $i$  и  $j$ ;  $D$  – константа случайной анизотропии;  $\vec{S}_i$  – гейзенберговский спин, находящийся в  $i$ -м узле аморфной структуры;  $\vec{n}_i$  – единичный вектор, определяющий направление оси локальной анизотропии;  $\mu = 9.72 \mu_B$  – эффективный магнитный момент атома Tb;  $h$  – напряженность внешнего магнитного поля.

Магнитные моменты атомов тербия взаимодействуют между собой по механизму дальнодей-

ствующего осциллирующего РККИ обмена [12]. Интеграл обменного взаимодействия быстро убывает с расстоянием между атомами, поэтому наибольший вклад в обменную энергию вносит положительное (ферромагнитное) взаимодействие между ближайшими соседями. В качестве первого приближения к РККИ-взаимодействию была выбрана убывающая линейная зависимость обменного интеграла от межатомного расстояния  $r$ .

$$J(r) = \begin{cases} J_0 \frac{r_{min} - r}{r_{min} - r_1}, & r \leq r_{min} \\ 0, & r > r_{min} \end{cases}, \quad (2)$$

где  $J_0 = 19.26$  К – среднее значение обменного интеграла, подобранное таким образом, чтобы температуры магнитного фазового перехода  $T_f$  были близки к экспериментальным значениям  $T_f$  для аморфных сплавов Re–Tb;  $r_1$  – положение первого пика на парциальной парной функции радиального распределения  $g_{Tb-Tb}(r)$ ;  $r_{min} = 0.446$  нм – положение первого минимума функции  $g_{Tb-Tb}(r)$ . Поскольку распределение межатомных расстояний в первой координационной сфере аморфного металла близко к нормальному, то и распределение обменных интегралов  $J_{ij}(r)$  также имеет вид, близкий к нормальному.

Из литературы известно, что для кристаллического тербия константа анизотропии равна  $5.5 \cdot 10^8$  эрг · см<sup>-3</sup> [12], что в пересчете на один атом составляет 127 К. При переходе материала из кристаллического в аморфное состояние величина константы анизотропии практически не меняется [2]. Поэтому в качестве базового значения константы анизотропии для аморфного тербия было выбрано значение  $D = 127$  К, т.е.  $D/J_0 = 127/19.26 \approx 6.6$ .

В данной работе выбрана линейная зависимость константы анизотропии от концентрации атомов тербия в АС Re-Tb:

$$D/J_0 = 6.6 \cdot x/100, \quad (3)$$

где  $x$  – концентрация атомов Tb ат. %. В модели чистого аморфного Tb константа анизотропии изменялась в широких пределах ( $D/J_0 = 0-20$ ).

Для АС системы Re–Gd и чистого аморфного гадолиния в качестве приближения к осциллирующему РККИ-взаимодействию выбрана следующая модель: в пределах первой координационной сферы спины атомов Gd взаимодействуют ферромагнитно, в пределах второй координационной сферы – антиферромагнитно, в результате чего в системе возникает конкуренция обменных взаимодействий разного знака, приводящая к возникновению состояния спинового стекла. Таким образом, гамильтониан, описывающий взаимодей-

ствие магнитных моментов атомов гадолиния, был записан в следующем виде [13]:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_1 (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j) - \frac{1}{2} \sum_{i,k} J_2 (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_k) - \mu h \sum_i S_i^z, \quad (4)$$

где  $J_1 > 0$  – интеграл обменного взаимодействия между спинами, расстояние между которыми не превышает  $r_1^{min} = 0.455$  нм – положения первого минимума парной функции распределения  $g(r)$ ;  $J_2 < 0$  – интеграл обменного взаимодействия между спинами, расстояние между которыми находится в интервале между  $r_1^{min}$  и  $r_2^{min} = 0.770$  нм – первым и вторым минимумами парной функции распределения  $g(r)$ ;  $\mu = 7.98 \mu_B$  – эффективный магнитный момент атома Gd;  $h$  – напряженность внешнего магнитного поля.

Значение интеграла обменного взаимодействия в первой координационной сфере  $J_1 = 45.7$  К подобрано таким образом, чтобы температуры магнитного фазового перехода  $T_f$  были близки к экспериментальным значениям  $T_f$  для АС Re–Gd. Значение отношения интегралов обменного взаимодействия в первой и второй координационных сферах  $J_1/|J_2|$  варьировалось в пределах от 8 до 12.

Моделирование релаксации намагниченности для всех систем проводилось следующим образом. Включалось внешнее магнитное поле напряженностью 1000 кЭ, направленное вдоль оси Oz, затем система выдерживалась в присутствии поля в течение 9–20 циклов по  $10^3$  МК-шагов/спин для того чтобы намагниченность вышла на постоянное значение (от 0.999 при  $D/J_0 = 0$  до 0.93 при  $D/J_0 = 20$ ). После этого внешнее магнитное поле выключалось и исследовалась зависимость проекции намагниченности на ось Oz, нормированной на намагниченность насыщения, от времени  $M(t)$ .

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

При всех рассмотренных значениях отношения  $D/J_0 > 0$  релаксация намагниченности является двухстадийной. На первой стадии, протекающей сразу после выключения внешнего магнитного поля, намагниченность очень быстро (за 1–2 цикла по  $10^3$  МК-шагов/спин) спадает на определенную величину  $\Delta M_z$ . При возрастании  $D/J_0$  величина скачка монотонно возрастает от 0 при  $D/J_0 = 0$  и стремится к постоянному значению 0.4 при  $D/J_0 \rightarrow \infty$ . На этой стадии имеет место разориентация магнитных моментов атомов тербия от состояния, в котором спины ориентированы по направлению внешнего магнитного

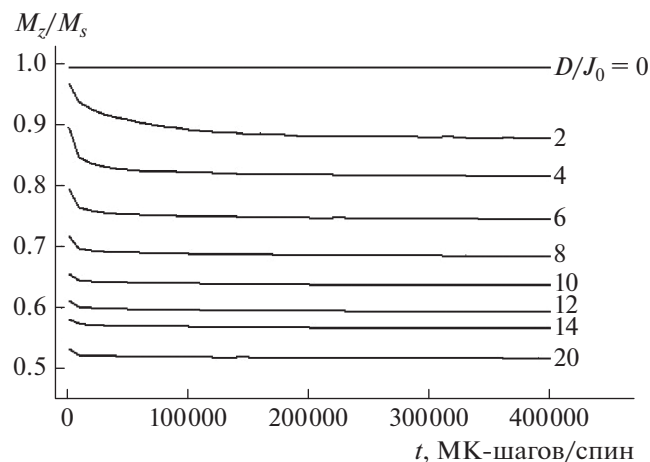


Рис. 1. Зависимость намагниченности от времени после выключения внешнего магнитного поля для модели аморфного Tb при  $T = 1$  К.

поля, к состоянию, в котором ориентацию спинов обусловлена главным образом направлениями осей локальной анизотропии.

На втором этапе релаксации наблюдается очень медленный спад намагниченности с течением времени без признаков выхода на какое-либо равновесное значение. На рис. 1 изображены зависимости проекции намагниченности на ось  $Oz$  от времени для модели аморфного Tb при различных значениях  $D/J_0$ . Из рисунка видно, что при  $D/J_0 = 0$  намагниченность практически не изменяется со временем. При значениях  $D/J_0 > 0$  зависимости  $M(t)$  монотонно убывают.

При любых значениях  $D/J_0$  зависимость  $M(t)$  является логарифмической:

$$M(t) = a - b \ln t, \quad (5)$$

где  $a$  и  $b$  – подгоночные параметры.

На первом этапе магнитные моменты атомов тербия поворачиваются на малые углы, что можно объяснить конкуренцией между обменным взаимодействием и случайной анизотропией.

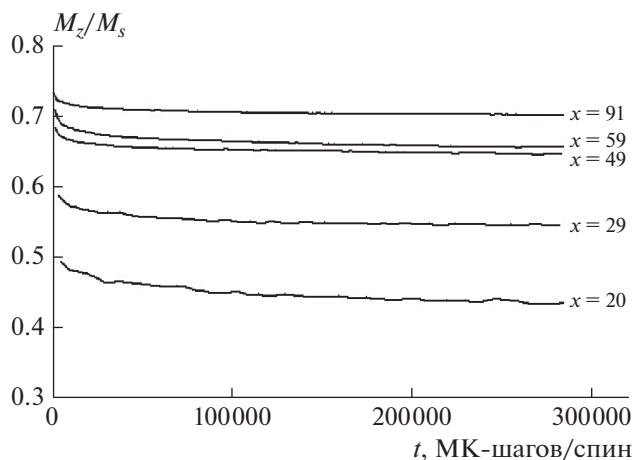
Для проверки этого предположения были рассчитаны функции распределения  $F(\theta)$  углов между направлениями магнитных моментов атомов Tb и направлениями соответствующих им осей случайной анизотропии при  $D/J_0 = 6.6$  и  $T = 1$  К в процессе релаксации намагниченности. В момент, непосредственно предшествующий выключению внешнего магнитного поля, функция  $F(\theta)$  представляет собой практически равномерное распределение по углам от  $\sim 30^\circ$  до  $\sim 150^\circ$ , т.к. в очень больших полях ( $H = 1000$  кЭ) намагниченность полностью определяется величиной внеш-

него поля, а влияние случайной анизотропии пренебрежимо мало. Через один цикл, состоящий из  $10^3$  МК-шагов/спин, после выключения внешнего поля функция  $F(\theta)$  претерпевает существенные изменения: на ней появляются два высоких максимума при  $\theta = 20^\circ$  и  $\theta = 160^\circ$  и широкий минимум при  $\theta = 70^\circ - 110^\circ$ . Это подтверждает предположение о том, что на первом этапе релаксации происходит переориентация спинов от направления, задаваемого внешним полем, к направлениям, близким к направлениям осей случайной анизотропии. В дальнейшем с течением времени вид кривой  $F(\theta)$  почти не меняется, лишь максимумы становятся немного выше. Следовательно, на втором этапе релаксации происходят повороты спинов на небольшие углы, что обусловлено конкуренцией обменного взаимодействия и случайной анизотропии.

Экспериментально подтверждено, что в реальных магнетиках со свойствами спинового стекла релаксация намагниченности также имеет логарифмический характер [14–16]. Это свойство объясняется тем, что в спин-стекляном состоянии имеет место очень широкий спектр времен релаксации, простирающийся до макроскопических величин. Энергетические минимумы, соответствующие различным способам ориентации спинов, разделены макроскопически высокими барьерами, поэтому имеют место макроскопически большие времена релаксации.

Если образец охлажден в поле до  $T < T_f$ , то после выключения поля намагниченность сначала падает скачком, а затем медленно уменьшается, оставаясь конечной даже через время  $10^5$  с [14]. Данная особенность свидетельствует о том, что в спиновых стеклах имеется широкий спектр времен релаксации, который простирается до макроскопических времен. Это подтверждает тот факт, что основное состояние спиновых стекол вырождено или квазивырождено. Минимумы энергии, соответствующие различным наборам ориентаций спинов, отделены друг от друга макроскопически высокими барьерами, и поэтому релаксация происходит за макроскопически большие времена.

Для модели аморфного Tb при  $D/J_0 = 6.6$  исследована релаксация намагниченности при различных температурах. При температурах  $T = 10 - 50$  К, соответствующих спин-стекляному состоянию, намагниченность уменьшается со временем также по логарифмическому закону (5). При температуре  $T = 60$  К, близкой к температуре спин-стекляного перехода  $T_f$ , намагниченность быстро уменьшается и флуктуирует вокруг нулевого значения. При температурах  $T < 60$  К, соответствующих парамагнитной фазе, намагниченность быстро спадает до нуля.



**Рис. 2.** Зависимость намагниченности от времени после выключения внешнего магнитного поля для моделей AC Re<sub>100-x</sub>Tb<sub>x</sub> при T = 1 К.

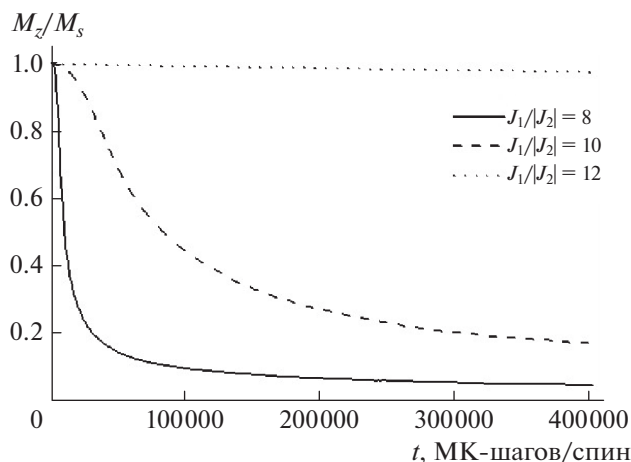
Таким же образом исследована релаксация намагниченности в моделях AC Re<sub>100-x</sub>Tb<sub>x</sub> (x = 20, 29, 49, 59, 91 ат. %). Так же, как и в моделях чистого Tb, релаксация намагниченности проходит в два этапа. На первом этапе наблюдается резкий спад намагниченности после выключения внешнего магнитного поля. Зависимость величины скачка от концентрации атомов тербия хорошо аппроксимируется убывающей экспонентой.

На втором этапе релаксации в AC Re–Tb происходит медленный спад намагниченности без выхода на какое-либо равновесное значение. На рис. 2 приведена зависимость намагниченности от времени после выключения внешнего магнитного поля для моделей AC Re–Tb при T = 1 К. Для всех исследованных сплавов также наблюдается логарифмический спад намагниченности.

Таким образом, в моделях аморфного Tb и AC системы Re–Tb в фазе спинового стекла релаксация намагниченности происходит в две стадии. На первой стадии намагниченность резко падает на определенную величину ΔM<sub>Z</sub>, на второй же стадии намагниченность медленно уменьшается по логарифмическому закону. Механизм двухстадийной релаксации намагниченности может быть объяснен с помощью модели случайной анизотропии в AC переходных и редкоземельных металлов.

Аналогичным образом исследована релаксация намагниченности в моделях аморфного Gd. На рис. 3 приведены зависимости намагниченности от времени после выключения внешнего магнитного поля H = 1000 кЭ для модели аморфного Gd при T = 1 К и значениях J<sub>1</sub>/|J<sub>2</sub>| = 8, 10, 12.

В отличие от моделей аморфного Tb и AC Re–Tb, в данных моделях не наблюдается скачка намагниченности непосредственно после выключе-



**Рис. 3.** Зависимость намагниченности от времени после выключения внешнего магнитного поля для модели аморфного Gd при T = 1 К.

ния внешнего магнитного поля. Таким образом, для аморфного Gd релаксация является одностадийной. Зависимость намагниченности от времени не является логарифмической, а описывается линейной комбинацией двух убывающих показательных функций:

$$M(t) = M_0 + A_1 e^{-\frac{t-t_0}{\tau_1}} + A_2 e^{-\frac{t-t_0}{\tau_2}}, \quad (6)$$

где M<sub>0</sub>, A<sub>1</sub>, A<sub>2</sub>, τ<sub>1</sub>, τ<sub>2</sub> – константы.

Отсутствие скачка намагниченности для модели аморфного Gd объясняется тем, что в аморфном гадолинии случайная анизотропия пренебрежимо мала по сравнению со случайным обменным взаимодействием. Основным фактором, влияющим на поведение намагниченности, является конкуренция обменных взаимодействий разного знака.

Также были исследованы зависимости намагниченности от времени после выключения внешнего магнитного поля для модели аморфного Gd при J<sub>1</sub>/|J<sub>2</sub>| = 10 и температурах T = 1, 10, 30 и 50 К (все температуры соответствуют спин-стекольной фазе). При всех температурах релаксация намагниченности также является одностадийной и хорошо описывается уравнением (6). С повышением температуры скорость убывания намагниченности растет, и при температуре перехода парамагнетик – спиновое стекло (T<sub>f</sub> = 50 К) намагниченность быстро падает до нуля.

На рис. 4 приведены зависимости намагниченности от времени после выключения внешнего магнитного поля H = 1000 кЭ для моделей AC Re<sub>100-x</sub>Gd<sub>x</sub> (x = 12, 37, 61, 93 ат. %) при T = 1 К. Релаксация намагниченности так же, как и для модели чистого аморфного Gd, является одностадийной и хорошо описывается уравнением (6).

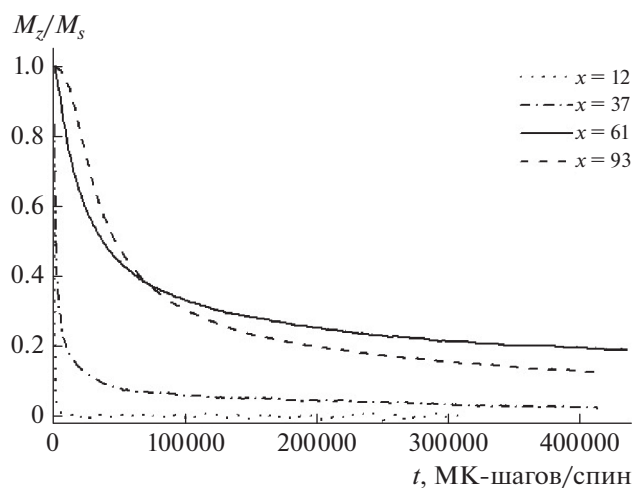


Рис. 4. Зависимость намагниченности от времени после выключения внешнего магнитного поля для моделей AC  $\text{Re}_{100-x}\text{Gd}_x$  при  $T = 1$  К.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

По результатам моделирования методом Монте-Карло показаны различия в характере релаксации намагниченности после выключения внешнего магнитного поля для АС со случайной анизотропией (Re–Tb) и с конкуренцией обменных взаимодействий разных знаков (Re–Gd). Установлено, что в аморфном Tb и в АС Re–Tb релаксация намагниченности является двухстадийной. Предложен возможный механизм двухстадийной релаксации. В аморфном Gd и в АС Re–Gd релаксация намагниченности является одностадийной.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Андреев А.С., Никитин С.А. // УФН. 1997. Т. 167. № 6. С. 605.
2. Chudnovsky E.M. // J. Appl. Phys. 1988. V. 64. No. 10. P. 5770.
3. Boucher V., Chieux P. // J. Phys. Cond. Matter. 1991. V. 3. No. 14. P. 2207.
4. Бармин Ю.В., Балалаев С.Ю., Бондарев А.В. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2006. Т. 70. № 8. С. 1145; Barmin Yu.V., Balalaev S.Yu., Bondarev A.V. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2006. V. 70. No. 8. P. 1308.
5. Alonso J.J., Allés B. // J. Phys. Cond. Matter. 2017. V. 29. No. 35. Art. No. 355802.
6. Мутайламов В.А., Муртазаев А.К. // ФТТ. 2018. Т. 60. № 6. С. 1108.
7. Прудников В.В., Прудников П.В., Маляренко П.Н. // ФТТ. 2018. Т. 60. № 6. С. 1086.
8. Бондарев А.В., Ожерельев В.В., Батаронов И.Л., Бармин Ю.В. // Изв. РАН. Сер. физ. 2011. Т. 75. № 10. С. 1436; Bondarev A.V., Ozherelyev V.V., Bataronov I.L., Barmin Yu.V. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2011. V. 75. No. 10. P. 1352.
9. Бондарев А.В., Пашуева И.М., Ожерельев В.В., Батаронов И.Л. // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 7. С. 924; Bondarev A.V., Pashueva I.M., Ozherelyev V.V., Bataronov I.L. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. No. 7. P. 841.
10. Батаронов И.Л., Бондарев А.В., Бармин Ю.В. // Изв. РАН. Сер. физ. 2000. Т. 64. № 9. С. 1666; Bataronov I.L., Bondarev A.V., Barmin Yu.V. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2000. V. 64. No. 9. P. 1329.
11. Harris R., Plischke M., Zuckermann M.J. // Phys. Rev. Lett. 1973. V. 31. No. 3. P. 160.
12. Никитин С.А. Магнитные свойства редкоземельных металлов и их сплавов. М.: Изд-во МГУ, 1989, 248 с.
13. Bondarev A.V., Bataronov I.L., Pashueva I.M. // J. Phys. Conf. Ser. 2019. V. 1163. Art. No. 012049.
14. Доценко В.С. // УФН. 1993. Т. 163. № 6. С. 1.
15. Золотухин И.В., Бармин Ю.В. Стабильность и процессы релаксации в металлических стеклах. М.: Металлургия, 1991, 158 с.
16. Takayama H. // J. Magn. Magn. Mater. 2004. V. 272–276. P. 256.

## Monte-Carlo simulation of magnetization relaxation in Re–Tb and Re–Gd amorphous alloys

I. M. Pashueva<sup>a</sup>, A. V. Bondarev<sup>b, \*</sup>, I. L. Bataronov<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Voronezh State Technical University, Voronezh, 394026 Russia

<sup>b</sup> National Research University of Electronic Technology (MIET), Moscow, 124498 Russia

\*e-mail: bondarev\_a\_v@mail.ru

Using the Monte Carlo method, we studied the magnetization relaxation after the switching off the external magnetic field in the models of the Re–Tb and Re–Gd amorphous alloys, and of pure amorphous Tb and Gd as well. The different nature of the magnetization relaxation is revealed for amorphous alloys with random anisotropy (Re–Tb) and with competition of exchange interactions of different signs (Re–Gd). In the Tb-based alloys the magnetization relaxation is two-stage, but in the Gd-based alloys it is one-stage.