

# Фазовая диаграмма магнитного состояния случайной трехмерной решетки точечных изинговских диполей

Е. З. Мейлихов<sup>1)</sup>

Институт молекулярной физики РНЦ “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 21 февраля 2003 г.

После переработки 14 апреля 2003 г.

В рамках обобщенной теории среднего поля показано, что основное состояние системы точечных изинговских диполей, случайным образом заполняющих узлы трехмерной кубической решетки, зависит от доли  $p$  заполненных узлов. Так, объемно-центрированная решетка при  $p > p_{c1} \approx 0.55$  ферромагнитна, при  $p_{c1} < p < p_{c2} \approx 0.35$  представляет собой спиновое стекло и при  $p < p_{c2}$  – парамагнитна. Переход между этими состояниями имеет перколяционную природу. Найдены температурные зависимости намагниченности в ферромагнитной фазе и восприимчивости в парамагнитной фазе. Построена магнитная фазовая диаграмма системы.

PACS: 75.10.–b, 75.50.Lk

**1. Введение.** Традиционная теория среднего поля в магнетиках учитывает тепловые флуктуации взаимодействующих магнитных моментов, но предполагает, что локальные поля для всех одинаковы. Это предположение не справедливо для случайных систем с конфигурационным беспорядком. Последний приводит к пространственным флуктуациям локального поля, которые, в отличие от тепловых флуктуаций, препятствуют установлению магнитного порядка даже при нулевой температуре. В системах с дальнедействующим взаимодействием, к каковым относится исследуемая в настоящей работе случайная трехмерная решетка точечных изинговских диполей, к этому добавляется и необходимость учета анизотропии такого взаимодействия.

Таким образом, для адекватного описания случайных магнитных систем традиционная теория среднего поля должна быть соответствующим образом обобщена. Характер такого обобщения зависит от типа случайности. В жидких случайных системах точечные диполи могут располагаться в любом месте пространства и в первом приближении корреляцию их пространственного расположения можно не учитывать. Такая случайность является марковской, и для определения функции распределения случайных магнитных полей, возникающих в такой системе, можно использовать метод Маркова [1]. Магнитные свойства подобных систем рассмотрены в [2]. В решеточных случайных системах диполи могут занимать (вероятностным образом) лишь вполне определенные позиции некоторой регулярной (кристаллической) струк-

туры. Упомянутый метод не пригоден для исследования таких систем, поскольку их случайность не является марковской. Именно такие системы изучаются в настоящей работе, где рассматриваются магнитные свойства трехмерной решеточной случайной среды.

Свойства решеточных изинговских ферромагнетиков с короткодействующим (обменным) взаимодействием магнитных моментов подробно исследованы статистическими [3] и перколяционными [4] методами. К сожалению, эти методы не пригодны для систем с дальнедействующим взаимодействием, каковым является дипольное взаимодействие. В этом случае приходится использовать соответствующим образом модифицированную теорию (случайного) среднего поля.

Рассматриваемая в работе модель случайной дипольной решетки применима для описания свойств различных физических объектов. Среди них – материалы с гигантским магнитосопротивлением (наногранулы магнитного материала в немагнитной металлической матрице), прозрачные ферромагнетики (то же – в полимерной матрице), замороженные феррожидкости, кристаллические системы с частично замещенными магнитными ионами. Среди последних отметим соединение  $\text{LiHoF}_4$ , кристаллизующееся в структуре шеелита  $\text{CaWO}_4$  (пространственная группа  $C_{4h}^6$ ). Его ферромагнетизм (температура Кюри  $T_C = 1.53$  К) обусловлен ионами  $\text{Ho}^{3+}$  с магнитным моментом  $m \sim 13\mu_B$ . При частичной замене ионов Ho немагнитными ионами  $\text{Y}^{3+}$  (с замкнутой электронной конфигурацией  $4f^6$ ) образуется соединение  $\text{LiHo}_x\text{Y}_{1-x}\text{F}_4$ , в котором магнитные ионы  $\text{Ho}^{3+}$

<sup>1)</sup> e-mail: meilikhov@imp.kiae.ru

случайным образом распределены по соответствующим узлам кристаллической решетки. Обменное взаимодействие магнитных моментов этих ионов, обусловленных незаполненной  $4f$ -оболочкой ( $4f^{10}$ ), эффективно экранируется  $5s$ - и  $5p$ -электронами. В результате основным становится диполь-дипольное межионное взаимодействие, причем кристаллическая анизотропия приводит к тому, что магнитные моменты являются изинговскими. Температура Кюри  $T_C(x)$  этого соединения монотонно падает с ростом  $x$  (особенно быстро в диапазоне  $x = 0.4 - 0.3$ ), и при  $x \sim 0.2$  оно становится парамагнитным [5].

Ниже показано, что магнитные свойства  $\text{LiHo}_x\text{Y}_{1-x}\text{F}_4$  можно вполне адекватно описать с помощью рассмотренной в настоящей работе модели случайной решетки изинговских диполей.

## 2. Обобщенная теория среднего поля для случайной 3D решетки точечных диполей.

Рассмотрим трехмерную квадратную решетку, в узлах которой случайным образом располагаются изинговские магнитные диполи. Пусть доля узлов решетки, занятых диполями, равна  $p$ , а их магнитные моменты  $\mathbf{m}_{ikl}$  параллельны одной из сторон решетки и принимают лишь два значения:  $\mathbf{m}_{ikl} = \pm m\mathbf{e}_0$ , где  $\mathbf{e}_0$  – единичный вектор, параллельный направлению диполей.

В традиционной теории принимается, что на каждый диполь действует одно и то же локальное поле  $\mathbf{H}_0$ , которое и определяет среднее значение  $\langle \mathbf{m}_{ikl} \rangle_T$  момента любого магнитного диполя (угловые скобки соответствуют усреднению по ансамблю, индекс  $T$  – термодинамическому усреднению). Для изинговских диполей  $\mathbf{H}_0 \parallel \mathbf{e}_0$  и получаем

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{m}_{ikl} \rangle_T &= \frac{\sum_{\mathbf{m}=\pm m\mathbf{e}_0} \mathbf{m} \exp(\mathbf{m}\mathbf{H}_0/kT)}{\sum_{\mathbf{m}=\pm m\mathbf{e}_0} \exp(\mathbf{m}\mathbf{H}_0/kT)} = \\ &= m\mathbf{e}_0 \operatorname{th}(mH_0/kT), \quad \mathbf{I} = n \langle \mathbf{m}_{ikl} \rangle_T, \end{aligned} \quad (1)$$

где  $\mathbf{I}$  – намагниченность системы,  $n$  – концентрация диполей. Для образца в виде длинного цилиндра, ось которого параллельна направлению магнитных диполей, локальное поле  $\mathbf{H}_0$  также параллельно его оси и равно

$$H_0 = \frac{4\pi}{3}I + H_3. \quad (2)$$

Здесь  $(4\pi/3)I$  – поле Лоренца, обусловленное поляризованными магнитными зарядами на поверхности сферы достаточно большого размера,

$$H_3 = m \sum_{ikl} \frac{3 \cos^2 \alpha_{ikl} - 1}{\rho_{ikl}^3}, \quad (3)$$

где суммирование проводится по узлам сферы, занятым диполями,  $\rho_{ikl}$  – расстояние между выбранным диполем (помещенным в начало координат) и диполем в позиции  $(ikl)$ ,  $\alpha_{ikl}$  – угол, который составляет соединяющая их линия с направлением  $\mathbf{e}_0$ .

Пусть система со случайным расположением диполей находится в состоянии, характеризуемом средней намагниченностью  $\mathbf{I} \parallel \mathbf{e}_0$ . Локальные магнитные поля  $H_3$  различны в разных узлах решетки и могут быть охарактеризованы функцией распределения  $F_p(\eta; H_3)$ , которая зависит от доли  $p$  заполненных узлов решетки и доли  $\eta$  диполей, чьи средние моменты направлены вдоль намагниченности  $\mathbf{I}$  системы.

Исследуем возможность магнитного упорядочения в рассматриваемой случайной системе. Ее намагниченность равна  $\mathbf{I} = pn \langle \mathbf{m}_i \rangle_T$ , где средний магнитный момент  $\langle \mathbf{m}_i \rangle_T$  должен вычисляться с учетом разброса случайных полей  $H_3$  путем обобщения соотношения (1), относящегося к регулярной системе. Соответствующее уравнение среднего случайного поля для намагниченности  $j = I/pnm$  имеет вид

$$j = \int_{-\infty}^{\infty} \operatorname{th} \left[ \frac{1}{\Theta} \left( \frac{4\pi}{3}pj + \frac{H_3}{mn} \right) \right] F_p(j; H_3) dH_3, \quad (4)$$

где  $\Theta = kT/m^2n$  – приведенная температура (здесь и ниже в качестве одного из аргументов функции  $F_p$  указывается намагниченность  $j = 2\eta - 1$ ).

Основное состояние ( $T = 0$ ) системы ферромагнитно ( $j_0 \equiv j(T = 0) = 1$ ), если интеграл в правой части (4) равен единице при  $j = 1$ . С учетом нормировки функции распределения это условие означает, что случайные поля  $H_0$  во всех узлах решетки должны быть положительны. Оно выполняется, если  $F_p(1; 4\pi I/3 + H_3 < 0) = 0$ .

Предельный случай полностью заполненной диполями решетки ( $p = 1$ ) исследовался в [6], где показано, что характер основного состояния длинного образца с кубической решеткой диполей зависит от ее типа: простая решетка всегда антиферромагнитна, объемно- и гранецентрированные решетки – ферромагнитны. В двух последних случаях при  $p = 1$  магнитное поле  $H_3$  во всех узлах решетки равно нулю. В согласии со сказанным выше, этому соответствует функция распределения  $F_p(1; H_3) = \delta(0)$ , которая,

очевидно, удовлетворяет приведенному выше условию ферромагнетизма.

Для ответа на вопрос, может ли ферромагнитное состояние быть основным для частично заполненной случайной решетки ( $p < 1$ ), необходимо понять, как меняется вид функций распределения  $F_p(j; H_3)$  при уменьшении  $p$ . В отсутствие точного метода определения вида этой функции мы предприняли ее численный расчет для объемно-центрированной кубической решетки точечных изинговских диполей, магнитные моменты которых направлены вдоль одной из сторон решетки. Система создавалась путем равномерно-случайного (с вероятностью  $p$ ) размещения диполей в узлах решетки размером  $21 \times 21 \times 21$ , после чего рассчитывалось магнитное поле  $H_3$  в ее центральном узле. Функции  $F_p(j; H_3)$  находились путем перебора большого числа (около  $10^4$ ) реализаций такой системы. Найденные таким образом функции распределения  $F_p(1; H_3)$  приведены на рис.1.

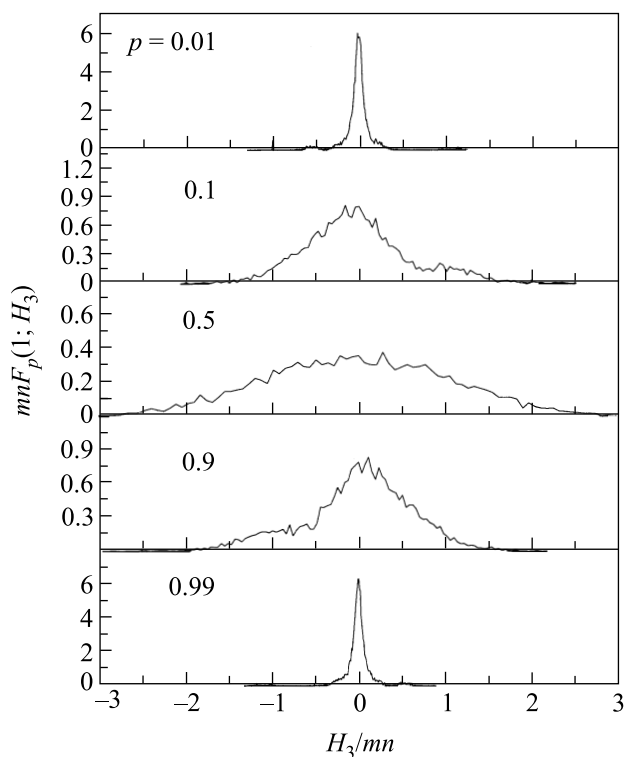


Рис.1. Функции распределения  $F_p(1; H_0)$  локальных магнитных полей в узлах объемно-центрированной кубической решетки изинговских диполей одного знака ( $j = 1$ ) при различных значениях доли  $p$  случайно заполненных узлов

При  $p \approx 1$  функция распределения имеет квазидельтаобразный вид и центрирована вблизи нуля. При уменьшении доли  $p$  заполненных узлов ее ши-

рина сначала увеличивается, а затем уменьшается. Это — следствие того обстоятельства, что функции распределения  $F_p(1; H_3)$ ,  $F_{1-p}(1; H_3)$  взаимодополняющих систем с долей занятых узлов  $p$  и  $(1-p)$  связаны друг с другом очевидным соотношением симметрии  $F_p(1; H_3) = F_{1-p}(1; -H_3)$ .

Как видно из рис.1, при значениях  $p$ , близких к единице, функция распределения отлична от нуля только при  $H_3 \approx 0$ , что соответствует ферромагнитному основному состоянию. Однако при относительно малых значениях  $p$  эта функция становится отличной от нуля в более широкой области  $H_3$ , что, согласно сказанному выше, препятствует возникновению ферромагнитного состояния с  $j_0 = 1$ . Таким образом, при уменьшении  $p$  происходит перколяционный магнитный фазовый переход из ферромагнитного состояния в состояние магнитного (спинового) стекла с  $j_0 < 1$ .

Для определения перколяционного порога  $p_{c1}$  этого перехода введем параметр  $\Omega(p)$ , характеризующий степень проникновения функции распределения  $F_p(1; H_0)$  в область значений поля  $H_3 < 4\pi I/3$  и равный вероятности возникновения конфигурации диполей с таким полем  $H_3$  при переборе различных конфигураций с заданным значением  $p$ . Иными словами,  $\Omega(p)$  — это доля конфигураций с  $H_3 < 4\pi I/3$  в общем числе изученных (при данном  $p$ ) дипольных конфигураций. Соответствующая зависимость (являющаяся результатом численных расчетов) представлена на рис.2.

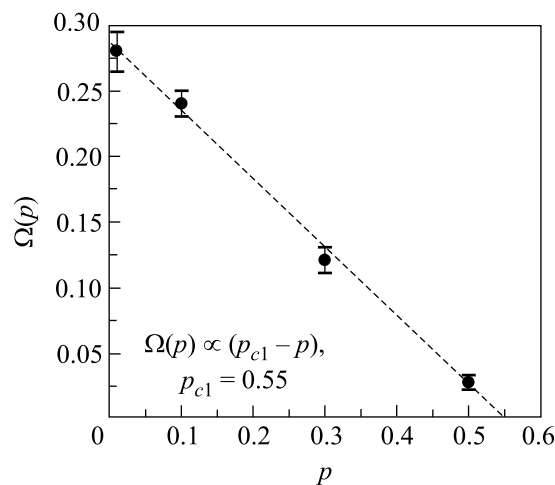


Рис.2. Экстраполяционный способ определения порога перколяции. Точки — результат численных расчетов, штриховая прямая — линейная зависимость  $\Omega(p) \propto (p_{c1} - p)$  ( $p_{c1} = 0.55$ )

Как обычно в теории перколяции [4], зависимость  $\Omega(p)$  оказывается степенной (в данном случае – линейной):  $\Omega(p) \propto (p_{c1} - p)$  с порогом перколяции  $p_{c1} = 0.55 \pm 0.02$ . Найденное значение существенно (более, чем вдвое) превышает то, которое соответствует перколяционному магнитному фазовому переходу из ферромагнитного в парамагнитное состояние в объемно-центрированной кубической решетке магнитных моментов с короткодействующим (парным) взаимодействием ( $p_c = 0.25$ ) [4]. Это связано с дальнедействующим характером дипольного взаимодействия, суммарный результат которого более чувствителен к беспорядку в системе.

Аналогичные расчеты показывают, что еще более чувствительной к беспорядку является гранцентрированная кубическая решетка изинговских диполей: ее основное состояние остается истинно ферромагнитным (то есть характеризуется намагниченностью  $j_0 = 1$ ) лишь в очень узком интервале значений  $p_{c1} < p < 1$ , где  $p_{c1} \approx 0.95$ . (В связи с этим напомним, что основное состояние простой кубической решетки изинговских диполей при  $p = 1$  вообще не является ферромагнитным.)

**3. Магнитная фазовая диаграмма.** Выше было установлено, что при  $p > p_{c1}$  рассматриваемая система в основном состоянии ( $T = 0$ ) представляет собой магнитное стекло с намагниченностью  $j_0 < 1$ . Температурная зависимость намагниченности и температура Кюри системы с выбранным значением  $p$  определяется уравнением (4). Для того чтобы найти его решение, необходимо проследить, как соответствующая функция распределения  $F_p(j, H_0)$  меняется при изменении  $j$ . Пример подобной эволюции функции распределения  $F_{0.9}(j, H_3)$  ( $p = 0.9$ ) приведен на рис.3. При проведении численных расчетов знак магнитного момента диполей выбирался случайным образом, исходя из того, что доля диполей с моментами, направленными вверх, равна  $\eta = (1+j)/2$ . Видно, что с уменьшением намагниченности ширина функции распределения монотонно увеличивается (сравни с рис.1, который относится к системам с  $j = 1$ , но различными  $p$ ), что и приводит к понижению температуры Кюри.

Используя найденные функции распределения  $F_p$ , можно при различных значениях намагниченности  $j$  и температуры вычислить интеграл в правой части уравнения (4) и найти его решение. Определенные таким образом температурные зависимости намагниченности для двух значений  $p$ , одно из которых ( $p = 0.9 > p_{c1}$ ) отвечает ферромагнитной фазе, а другое ( $p = 0.5 < p_{c1}$ ) – стекольной фазе, приведены на рис.4.

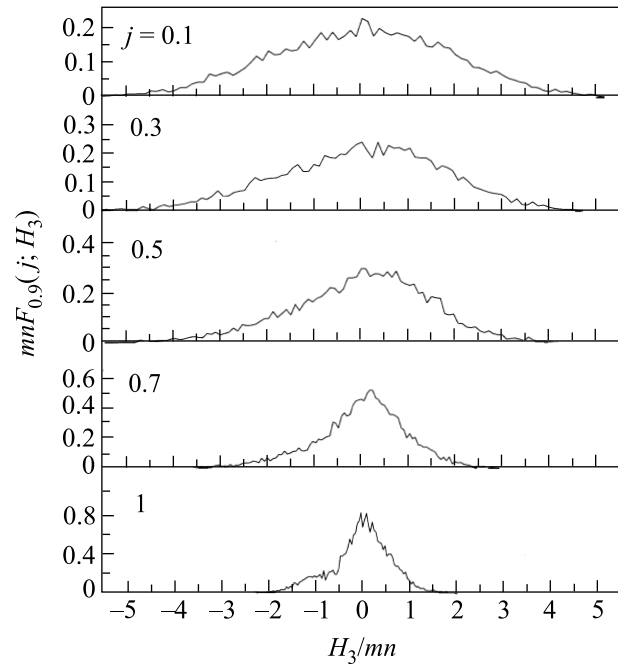


Рис.3. Функции распределения  $F_{0.9}(j, H_0)$  локальных магнитных полей в узлах случайной ( $p = 0.9$ ) объемно-центрированной кубической решетки изинговских диполей разных знаков

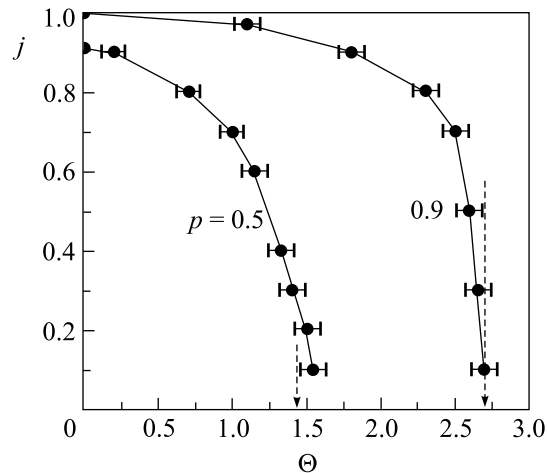


Рис.4. Температурные зависимости намагниченности случайных ( $p = 0.9, 0.5$ ) объемно-центрированных кубических решеток изинговских диполей. Штриховые линии указывают соответствующие значения температуры Кюри, рассчитанные по (8)

Ширина температурной области ( $0 < \Theta < \Theta_c$ ), в которой рассматриваемая случайная система обладает спонтанной намагниченностью  $j > 0$ , падает с уменьшением  $p$ , и при значениях концентрации диполей, меньших некоторой критической величины

( $p < p_{c2}$ ), основное состояние системы становится парамагнитным (см. ниже).

Для описания свойств парамагнитной системы во внешнем магнитном поле  $H_e$  можно по-прежнему использовать уравнение среднего случайного поля (4), произведя замену  $H_3 \rightarrow H_e + H_3$  в аргументе функции  $\text{th}$ , после чего это уравнение приобретает вид

$$j = \int_{-\infty}^{\infty} \text{th} \left[ \frac{1}{\Theta} \left( \frac{4\pi}{3} pj + \frac{H_e + H_3}{mn} \right) \right] F_p(j; H_3) dH_3. \quad (5)$$

Наибольший интерес представляет, как обычно, слабополевая магнитная восприимчивость системы  $\chi = \lim_{H_e \rightarrow 0} (\partial I / \partial H_e)$ , для которой из (5) получаем

$$\chi = \frac{pJ_1(p, \Theta)}{\Theta - [(4\pi p/3)J_1(p, \Theta) + \Theta J_2(p, \Theta)]}, \quad (6)$$

где

$$J_1(p, \Theta) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{F_p(0; H_3) dH_3}{\text{ch}^2(H_3/\Theta mn)},$$

$$J_2(p, \Theta) = \int_{-\infty}^{\infty} \text{th}(H_3/\Theta mn) \left( \frac{\partial F_p(j; H_3)}{\partial j} \right)_{j=0} dH_3. \quad (7)$$

Исследование полученных путем численных расчетов функций распределения  $F_p(j; H_3)$  показывает, что  $J_2 \ll J_1$ ; это существенно упрощает уравнение (6), определяющее восприимчивость системы и ее температуру Кюри. Последняя находится из условия обращения знаменателя (6) в нуль, как корень уравнения

$$\Theta = (4\pi p/3)J_1(p, \Theta). \quad (8)$$

Рассчитанная по (8) концентрационная зависимость  $\Theta_C(p)$  приведенной температуры Кюри приведена на рис.5. Она хорошо описывается степенным законом  $\Theta_C \propto (p - p_{c2})^{1/2}$ , где  $p_{c2} = 0.35$ . Максимальная температура Кюри (при  $p = 1$ ) составляет  $\Theta_C \approx 3$ , что соответствует характерной энергии дипольного взаимодействия  $kT_C \sim m^2 n$ . (Для  $\text{LiHoF}_4$   $m \approx 13\mu_B$ ,  $n \approx 1.4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$  [5], что в согласии с экспериментом дает  $T_C \sim 1 \text{ К}$ .)

Полученные результаты позволяют построить магнитную фазовую диаграмму рассматриваемой случайной системы (см. рис.6), на которой в координатах концентрация диполей – температура отмечены области ферромагнитного, стекольного и парамагнитного состояний.

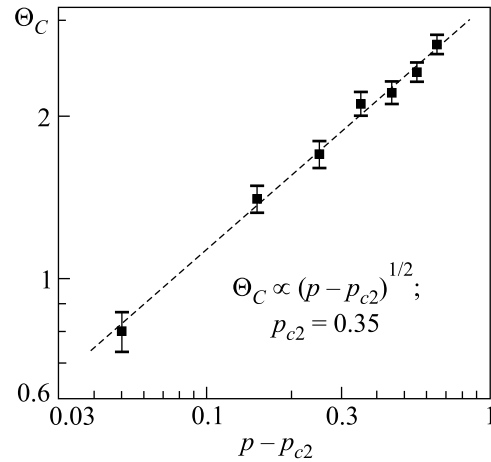


Рис.5. Концентрационная зависимость температуры Кюри случайной объемно-центрированной кубической решетки изинговских диполей

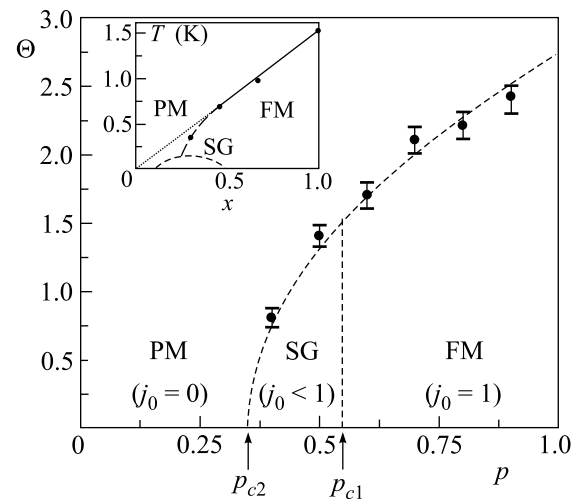


Рис.6. Магнитная фазовая диаграмма случайной объемно-центрированной кубической решетки изинговских диполей (FM – ферромагнетик, SG – спиновое стекло, PM – парамагнетик). На вставке – экспериментальная магнитная фазовая диаграмма соединения  $\text{LiHo}_x \text{Y}_{1-x} \text{F}_4$

Насколько правильно эта диаграмма описывает магнитное поведение систем рассматриваемого типа, можно понять, если сравнить ее с экспериментальными результатами, относящимися к свойствам соединения  $\text{LiHo}_x \text{Y}_{1-x} \text{F}_4$ . Экспериментальная фазовая диаграмма магнитного состояния  $\text{LiHo}_x \text{Y}_{1-x} \text{F}_4$ , которая приведена на вставке рис.6, очень похожа на полученную в настоящей работе. Это позволяет надеяться, что магнитные свойства  $\text{LiHo}_x \text{Y}_{1-x} \text{F}_4$  вполне адекватно описываются в рамках рассмотренной

в настоящей работе модели случайной решетки изинговских диполей.

Температурный ход восприимчивости в парамагнитной фазе дается соотношением (6). Соответствующие зависимости  $\chi(T)$ , приведенные на рис.7, показывают, что при  $\Theta \gg \Theta_C$  температурный ход вос-

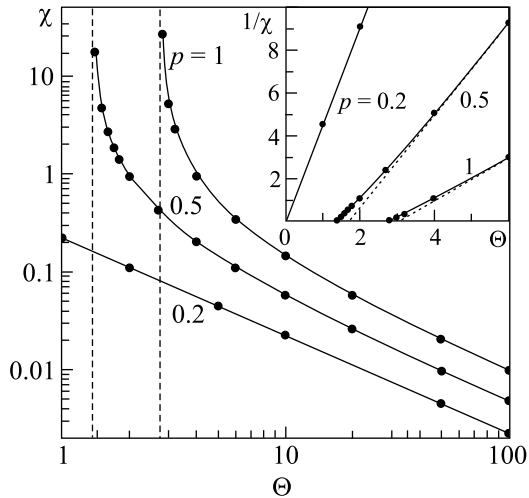


Рис.7. Температурные зависимости слабополевой магнитной восприимчивости парамагнитного состояния случайных ( $p = 0.9, 0.5, 0.2$ ) объемно-центрированных кубических решеток изинговских диполей. Вертикальные штриховые линии указывают соответствующие значения температуры Кюри, рассчитанные по (8). На вставке – то же для обратной величины магнитной восприимчивости; наклонные пунктирные прямые – экстраполяция линейных при высокой температуре зависимостей  $\chi^{-1} \propto (\Theta - \Theta_C)$

приимчивости описывается обычным законом Кюри. Однако восприимчивость системы, основное состояние которой обладает ненулевой намагниченностью, не описывается стандартным линейным законом  $\chi^{-1} \propto (T - T_C)$ : при  $T \rightarrow T_C$  ее рост замедляется, что связано с “разрушающим” действием конфигурационного беспорядка.

**4. Заключение.** Применительно к случайным системам с магнитным взаимодействием теория среднего поля требует обобщения, которое учитывает неэквивалентность отдельных магнитных моментов, связанную с их различным (случайным) окружением. Рассмотренная в настоящей работе конфигурационная случайность в трехмерной решетке точечных изинговских диполей приводит к перколяционному переходу из ферромагнитного состояния в стекловидное, а затем – в парамагнитное состояние при уменьшении доли  $p$  узлов, занятых диполями. В отличие от перколяционного фазового перехода в сис-

теме с короткодействующим обменным взаимодействием, это – пример дальнодействующей перколяции. Пороги перколяции для этих двух случаев существенно различаются.

Все выводы работы получены в рамках модифицированной теории среднего поля, которое, как и традиционное приближение, не учитывает спиновых корреляций. В системе с дальнодействующим взаимодействием, каковым является рассмотренное в работе трехмерное диполь-дипольное взаимодействие, возможны лишь длинноволновые корреляции, которые могут быть учтены в рамках теории Гинзбурга–Ландау. Результаты последней, как известно [7], отличаются от результатов теории среднего поля лишь в области температур, близких к критической температуре, слабо изменяя саму величину  $T_C$ , а значит, и найденную в работе магнитную фазовую диаграмму. Одно из возможных проявлений спиновых корреляций состоит в возникновении таких локальных конфигураций, в которых моменты некоторых диполей направлены против намагниченности системы (то есть  $j_0 < 1$  даже в области  $p_{c1} < p < 1$ ). Намагниченность системы должна отличаться от единицы в меру отклонения от нуля функции распределения  $F_p(1; H_0)$  в области больших по абсолютной величине отрицательных магнитных полей. Насколько она отличается от нуля и как быстро падает в этой области, можно было бы понять с помощью численного расчета. Однако любой численный расчет, основанный на переборе *конечного* числа случайных реализаций системы, не может дать ответа на вопрос о степени проникновения функции распределения  $F_p(1; H_0)$  в область очень больших отрицательных полей. Видно только, что она чрезвычайно мала: функции  $F_p(1; H_0)$  похожи на гауссовские функции (см. рис.2 и 4), что соответствует экспоненциально малому отклонению намагниченности системы от единицы.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 03-02-17029).

1. S. Chandrasekhar, Rev. Mod. Phys. **15**, 1 (1943).
2. Е. З. Мейлихов, Р. М. Фарзетдинова, ЖЭТФ No 8 (2003).
3. Т. Хилл, *Статистическая механика*, М.: ИИЛ, 1960.
4. Б. И. Шкловский, А. Л. Эфрос, *Электронные свойства легированных полупроводников*, изд. М.: Наука, 1979.
5. D. H. Reich, B. Ellman, J. Yang et. al., Phys. Rev. **B42**, 4631 (1990).
6. J. A. Sauer, Phys. Rev. **57**, 142 (1940).
7. Вик. С. Доценко, УФН **165**, 481 (1995).