11,12

Проявление фрустраций основного состояния двумерной разбавленной модели Изинга в магнитокалорическом эффекте

© А.В. Шадрин, В.А. Улитко, Ю.Д. Панов

Уральский федеральный университет,
Екатеринбург, Россия

E-mail: fynjygame@rambler.ru

Поступила в Редакцию 26 марта 2020 г.
В окончательной редакции 26 марта 2020 г.
Принята к публикации 2 апреля 2020 г.

Рассмотрен магнитокалорический эффект в двумерной разбавленной модели Изинга при различных соотношениях параметров межузельного отталкивания немагнитных примесей и обменного взаимодействия. Численное моделирование методом классического Монте-Карло на квадратной решетке показывает, что в случае слабого обмена при достаточно больших концентрациях немагнитных примесей происходит разрушение дальнего ферромагнитного упорядочения с образованием изолированных спиновых кластеров в основном состоянии системы. Это приводит к появлению парамагнитного отклика системы при нулевой температуре и отличной от нуля энтропии основного состояния. Обсуждается возможность обнаружения фрустрации основного состояния, используя данные об изменении магнитной энтропии.

Ключевые слова: разбавленная модель Изинга, фрустрации, магнитокалорический эффект.

DOI: 10.21883/FTT.2020.09.49785.32H

1. Введение

Магнитокалорический эффект (МКЭ) представляет собой выделение или поглощение теплоты в результате изменения внешнего магнитного поля, приложенного к материалу. Сначала этот эффект использовался для достижения температур ниже 1 K, но после открытия материалов, демонстрирующих МКЭ вблизи комнатной температуры, магнитное охлаждение стало очень активной областью исследований. Особый интерес представляет МКЭ во фрустрированных и низкоразмерных системах [1–4]. В двумерных системах типа Изинга были исследованы зависимости МКЭ от параметра магнитоупругого взаимодействия для квадратной решетки [5], от формы и размера геометрически фрустрированных изинговских спиновых кластеров для треугольной решетки [6].

В работе рассматривается двумерная изинговская система с фиксированной концентрацией немагнитных подвижных заряженных примесей. Разбавленная модель Изинга является одной из основных моделей [7,8] в теории магнитных систем с закаленным или отожженным беспорядком, а также в термодинамической теории бинарных сплавов, смесей классических и квантовых жидкостей.

Для описания нашей системы мы используем псевдоспиновый формализм $S = 1$, в котором для данного узла решетки состояния с проекциями псевдоспина $S_z = \pm 1$ соответствуют двум магнитным состояниям с проекциями спина $s_z = \pm 1/2$, в то время как состояние с $S_z = 0$ соответствует заряженной немагнитной примеси. Запишем гамильтониан следующим образом:

$$H = -\tilde{J}\sum_{\langle ij\rangle} S_{zi}S_{zj} + V\sum_{\langle ij\rangle} P_{0i}P_{0j} - h\sum_{i} S_{zi}, \qquad (1)$$

где S_{zi} — z-проекция оператора псевдоспина на узле, $P_{0i} = 1 - S_{zi}^2$ — оператор проекции на состояние $S_{zi} = 0$, $\tilde{J} = Js^2$, J — обменный интеграл, $s = 1/2$, V — межузельное взаимодействие примесей, h — внешнее магнитное поле, $\langle ij\rangle$ — ближайшие соседи, а суммирование проводится по всем узлам двумерной квадратной решетки. Концентрация заряженных немагнитных примесей n фиксирована: $nN = \sum_i P_{0i} = \mathrm{const}$, где N — число узлов решетки.

Система с гамильтонианом (1) демонстрирует два типа фазовых диаграмм, примеры которых показаны на рис. 1. На левой панели (рис. 1, a) представлен случай сильного обмена, $\tilde{J} > V$. В диапазоне $0 < n < 0.6$ в системе с понижением температуры наблюдается два последовательных фазовых перехода. Первым из них является переход из высокотемпературного неупорядоченного состояния в упорядоченное ферромагнитное (FM) состояние, разбавленное случайно распределенными заряженными примесями. При низких температурах происходит „конденсация“ подвижных заряженных примесей в „капли“. Это означает, что разбавленная FM-фаза в случае сильного обмена является нестабильной по отношению к фазовому расслоению (PS), когда FM-матрица выталкивает примеси, чтобы минимизировать связанную с ними поверхностную энергию. На правой панели (рис. 1, b) представлен случай слабого обмена, $\tilde{J} < V$.

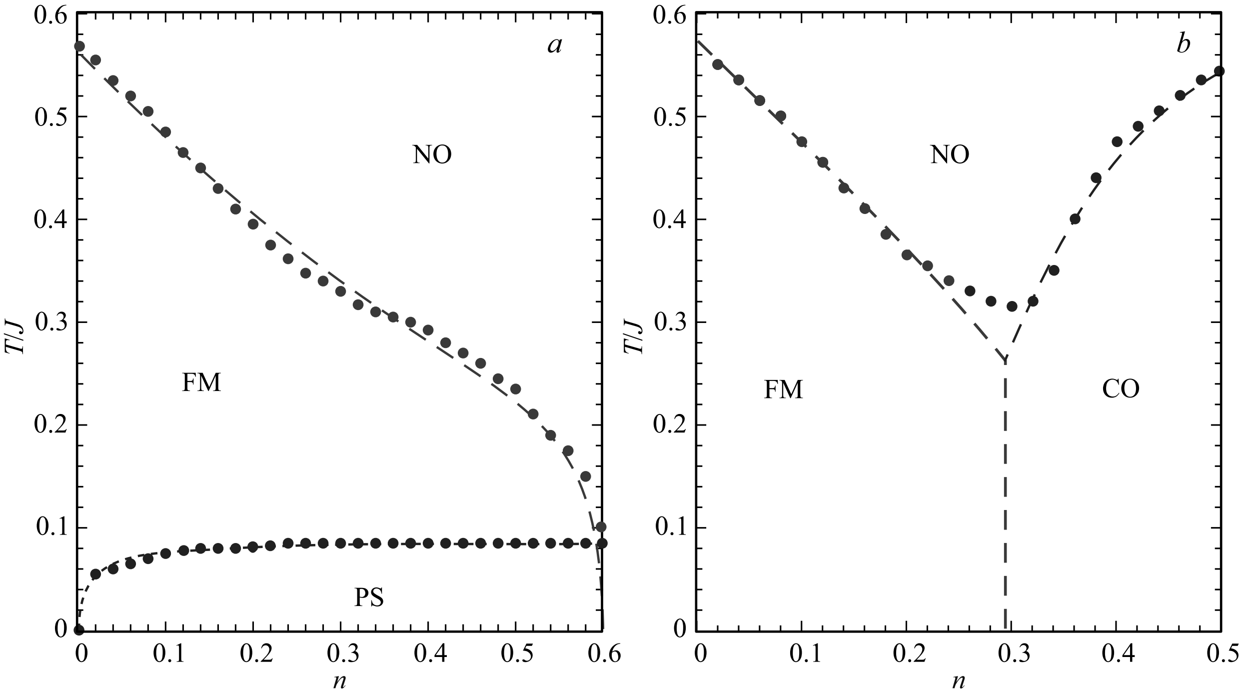

Рис. 1. Фазовые диаграммы системы с гамильтонианом (1). (a) — $V/\tilde{J} = 0.4$ (случай сильного обмена). (b) — $V/\tilde{J} = 4.0$ (случай слабого обмена). Кружками обозначены температуры, соответствующие максимальным значениям теплоемкости, полученным методом Монте-Карло. Пунктирные линии схематически показывают границы неупорядоченной (NO), ферромагнитной (FM) и зарядово-упорядоченной (CO) фаз, а также области с фазовым расслоением (PS).

С увеличением концентрации примесей FM-упорядочение спинов сменяется зарядовым упорядочением (CO) немагнитных примесей. В дальнейшем мы ограничимся диапазоном $0 < n < 0.5$, поскольку при $n > 0.5$ не существует дальнего порядка в спиновой системе с достаточно высокой критической температурой.

Конкуренция магнитного и зарядового порядков может быть реализована в системах с диспропорционированием или нестабильностью по отношению к флуктуациям переноса заряда [9], например, в купратах. Как правило, увеличение концентрации примесей n разрушает магнитный порядок, снижает критическую температуру и приводит к снижению температуры максимального значения параметров МКЭ, таких как изотермическое изменение магнитной энтропии и адиабатическое изменение температуры. Изменение температуры максимального значения МКЭ при изменении химического состава материала хорошо известно [10–12]. Но фазовое состояние системы с гамильтонианом (1) зависит также от отношения констант обменного и заряд-зарядового взаимодействий, как это было продемонстрировано в аналогичной спин-псевдоспиновой модели [13–16]. В настоящей работе проводится сравнение параметров МКЭ для случаев сильного и слабого обмена, а также исследуется возможность обнаружения фрустрации в основном состоянии системы при слабом обмене с использованием данных об изменении магнитной энтропии.

2. Методика расчета параметров МКЭ с использованием данных Монте-Карло

Основными параметрами, характеризующими МКЭ, являются адиабатическое изменение температуры ΔT_{ad} и изотермическое изменение магнитной энтропии ΔS_M. Величина ΔS_M вычисляется по формуле

$$\Delta S_M(T, h_m) = \int_0^T \frac{C(T', h_m) - C(T', 0)}{T'}\, dT', \qquad (2)$$

где C — теплоемкость. Соотношение Максвелла $(\partial S/\partial h)_T = (\partial M/\partial T)_h$ дает нам другое выражение для ΔS_M и формулу для ΔT_{ad}:

$$\Delta S_M(T, h_m) = \int_0^{h_m} \left(\frac{\partial M(T, h)}{\partial T}\right)_h dh, \qquad (3)$$

$$\Delta T_{ad}(T, h_m) = \int_0^{h_m} \frac{T}{C(T, h)} \left(\frac{\partial M(T, h)}{\partial T}\right)_h dh, \qquad (4)$$

где M — намагниченность, а h — внешнее магнитное поле. Выражения (2) и (3) в случае фазовых переходов второго рода должны давать один и тот же результат. В дальнейшем мы записываем магнитное поле и

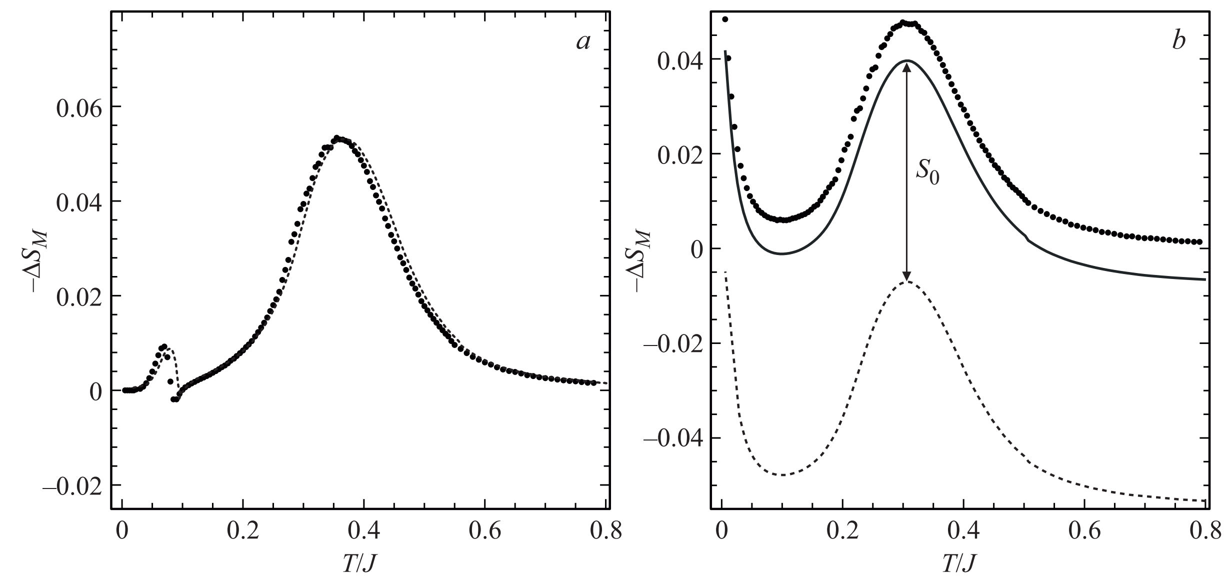

Рис. 2. Изменение магнитной энтропии при $n = 0.3$ в случае сильного обмена, $V/\tilde{J} = 0.4$ (a) и в случае слабого обмена, $V/\tilde{J} = 4.0$ (b). Пунктирной линией и кружками показаны результаты, полученные с помощью уравнений (2) и (3) соответственно. Сплошная линия в случае слабого обмена учитывает вклад по формуле (6). Величина соответствует средней концентрации изолированных парамагнитных кластеров при $n = 0.3$, показанной на рис. 3.

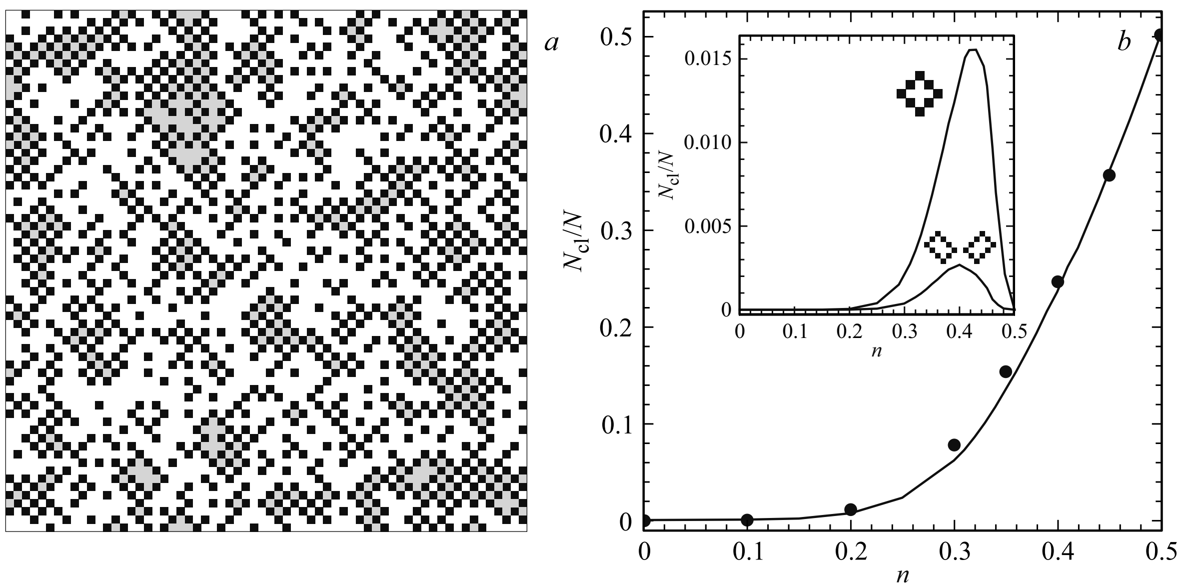

Рис. 3. (a) — снимок мгновенной конфигурации основного состояния, $n = 0.3$, $V/\tilde{J} = 4$ (случай слабого обмена). Белые и светло-серые квадраты показывают узлы решетки с $S_z = 0$ и $S_z = -1$ соответственно. Черные квадраты показывают положения немагнитных примесей, $S_z = 0$. (b) — средняя концентрация изолированных парамагнитных кластеров на решетке 64×64. На вставке показаны результаты для кластеров, содержащих 5 и 8 спинов. Кружками показана разница между максимальными значениями изменения магнитной энтропии ΔS_M, вычисленными по формулам (2) и (3), выраженная в единицах средней концентрации по формуле (5).

температуру в энергетических единицах, а энтропию в единицах k_B.

Мы использовали алгоритм Метрополиса в классическом методе Монте-Карло для получения температурных зависимостей параметров МКЭ для системы с гамильтонианом (1). Расчеты проводились на квадратной решетке 64×64 с периодическими граничными условиями. Условие постоянства концентрации примесей $nN = \sum_i P_{0i} = \mathrm{const}$ в нашей программе выполнялось гарантированно, поскольку изменение состояния произвольно выбранной пары узлов решетки a и b проводилось с сохранением суммы $P_{0a} + P_{0b}$.

Мы реализовали параллельный вариант этого алгоритма для вычисления на графических ускорителях

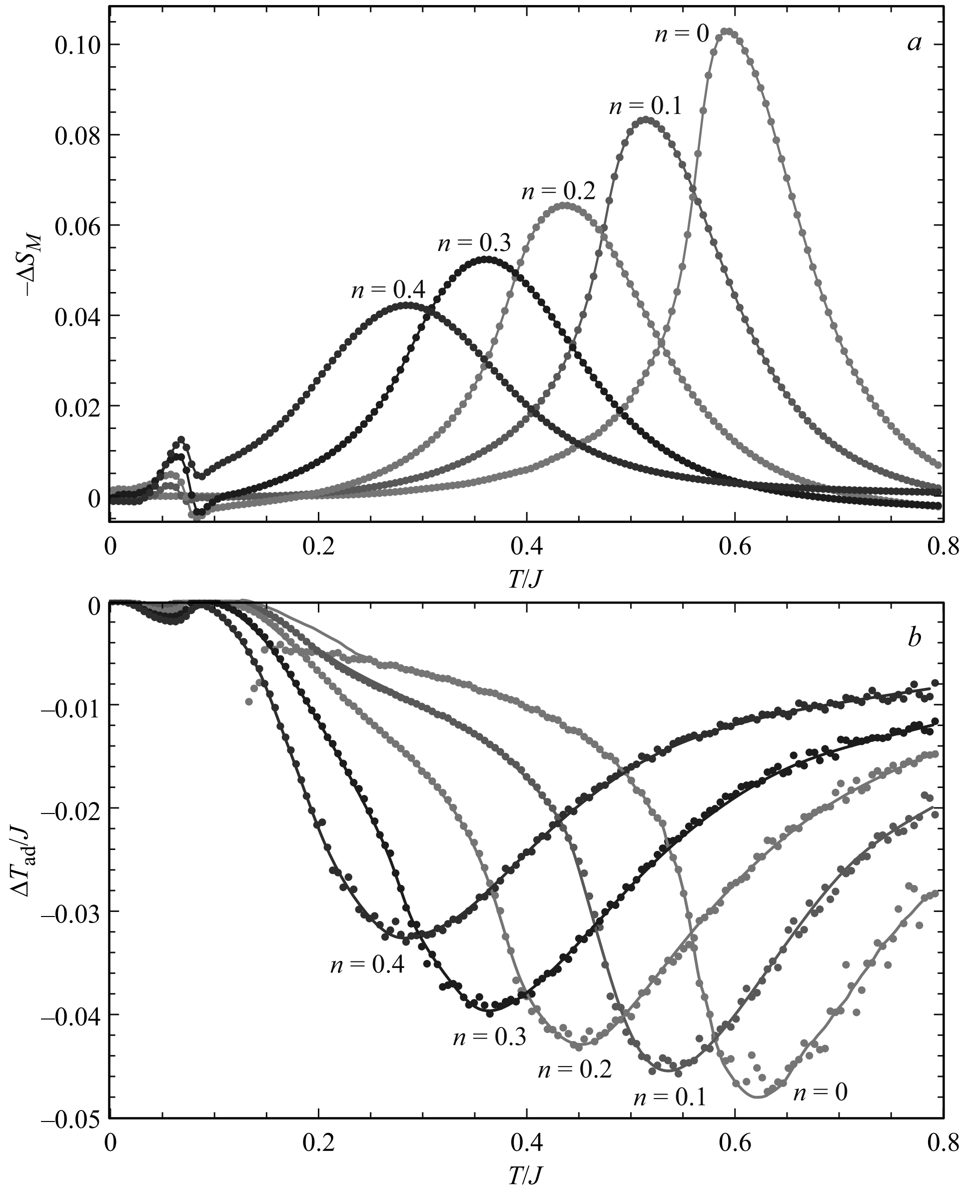

Рис. 4. Изменение магнитной энтропии ΔS_M и адиабатическое изменение температуры ΔT_{ad} для концентраций немагнитных примесей $n = 0-0.4$ в случае сильного обмена, $V/\tilde{J} = 0.4$.

NVIDIA, что позволило нам одновременно выполнять расчеты для 64 копий системы. Для каждой копии системы мы понижали температуру при постоянном внешнем магнитном поле от значения $T_1/J = 1.0$, что примерно в два раза превышает температуру магнитного упорядочения, до $T_0/J = 0.01$ с шагом $T/J = 0.01$. Затем мы изменяли значение внешнего магнитного поля от $h/J = 0$ до $h_m/J = 0.04$ с шагом $h/J = 0.001$. Моделирование проводилось для концентрации примесей $0 < n < 0.5$ с шагом $n = 0.1$. Для каждого значения n, T и h мы получали средние значения энергии, удельной теплоемкости C и намагниченности M. Это позволило нам использовать в качестве дискретного приближения для уравнений $(2-4)$ правило трапеций для интегралов и трехточечный метод для производной $(\partial M/\partial T)_h$.

Выражения (2) и (3) позволяют нам рассчитать изменение магнитной энтропии, используя различные данные Монте-Карло, а именно, удельную теплоемкость и намагниченность. Результаты этих расчетов достаточно хорошо согласуются для случая сильного обмена $(\tilde{J} > V)$ и различны для случая слабого обмена $(\tilde{J} < V)$. Это проиллюстрировано на рис. 2 для концентрации примесей $n = 0.3$.

В отличие от случая сильного обмена, при сильном заряд-зарядовом взаимодействии примесей $(V > \tilde{J})$ значение парной функции распределения примесей для ближайших соседей обращается в 0 при достаточно низкой температуре и приводит к зарядовому упорядочению для $n \geq 0.3$. Типичная картина такого зарядового упорядочения приведена на рис. 3. В результате обра-

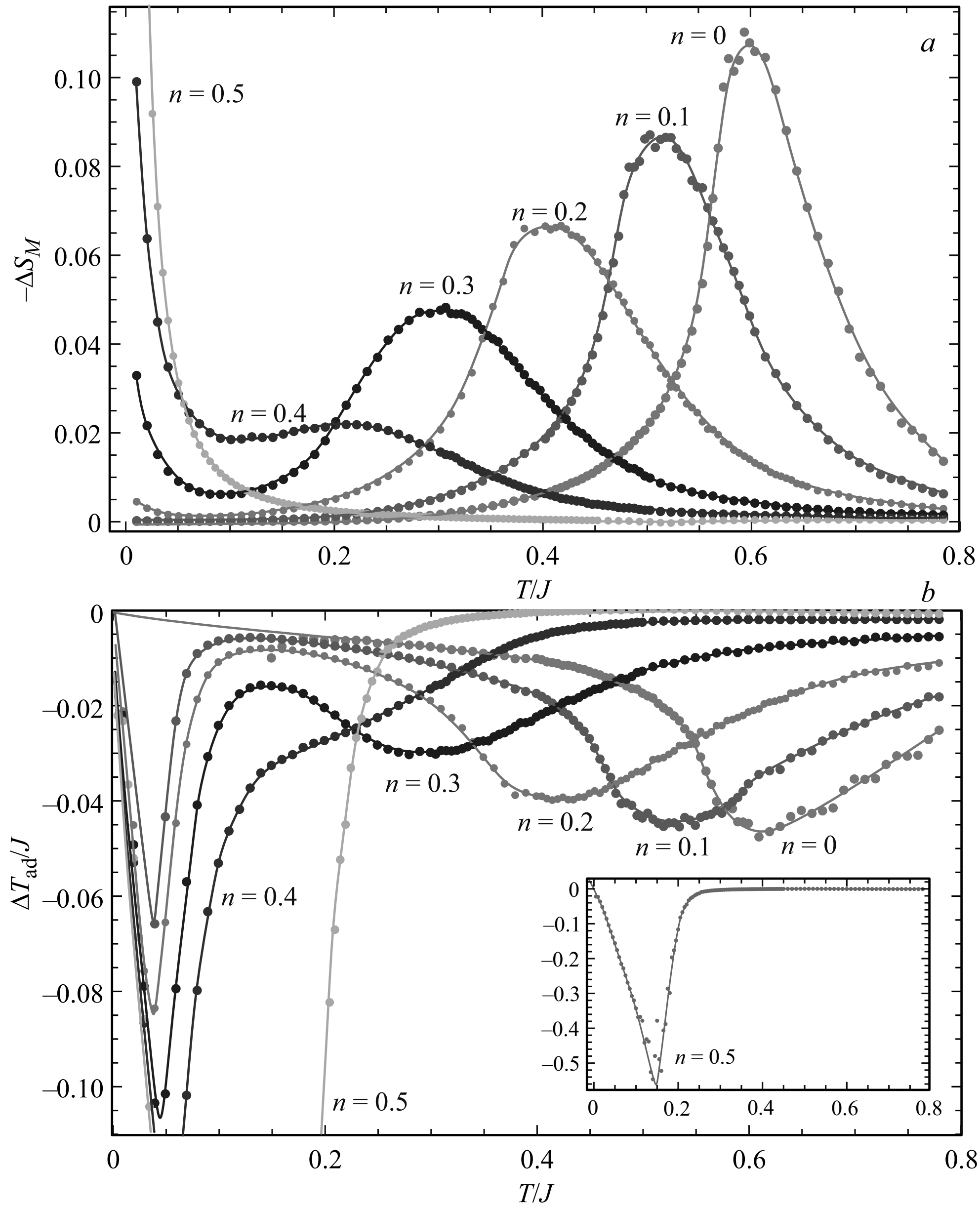

Рис. 5. Изменение магнитной энтропии ΔS_M и адиабатическое изменение температуры ΔT_{ad} для концентраций немагнитных примесей $n = 0{-}0.5$ в случае слабого обмена, $V/\tilde{J} = 4$. На вставке отдельно изображены результаты для $n = 0.5$.

зуются изолированные спиновые кластеры, окруженные немагнитными примесями. Эти кластеры ведут себя как парамагнитные центры и дают дополнительный вклад S_0 в энтропию системы при нулевой температуре. Простейшая оценка этого вклада может быть сделана в виде

$$S_0 = N_{cl} \ln 2, \tag{5}$$

где N_{cl} — количество изолированных спиновых кластеров. Чтобы найти средние числа кластеров на решетке 64×64, мы использовали независимую программу, которая генерировала случайные распределения заряженных примесей с наименьшей энергией. Результаты расчета показаны на рис. 3. С учетом вклада (5) формула (2) принимает вид

$$\Delta S_M(T, h) = S_0 + \int\limits_{T_{\min}}^{T} \frac{C(T', h_m) - C(T', 0)}{T'}\, dT', \tag{6}$$

где $T_{\min}$ — минимальная температура, используемая в расчетах Монте-Карло. Как показано на рис. 2, это улучшает согласованность с зависимостью ΔS_M, рассчитанной по формуле (3). Таким образом, различия в результатах для изменения магнитной энтропии ΔS_M, полученных с использованием формул (2) и (3), могут указывать на некоторые скрытые фрустрации в системе.

3. Результаты

На рис. 3 представлена зависимость концентрации изолированных парамагнитных кластеров, а также разница между максимальными значениями изменения магнитной энтропии ΔS_M, вычисленными по формулам (2) и (3), выраженная в единицах средней концентрации. Можно отметить хорошее согласие концентрации кластеров с данными о фрустрации основного состояния системы, полученными из МКЭ. На вставке изображены парциальные вклады кластеров из 5 и 8 спинов. Максимальные значения этих вкладов на порядок меньше, чем величина общей концентрации изолированных парамагнитных кластеров при данном n, что позволяет сделать вывод об определяющем вкладе в энтропию основного состояния кластеров минимального размера, включающих 1 спин. При этом концентрация минимальных парамагнитных кластеров монотонно возрастает с ростом n достигая максимума $N_{Cl}/N = 0.5$ при $n = 0.5$.

Из данных Монте-Карло мы вычислили изотермическое изменение магнитной энтропии ΔS_M и адиабатическое изменение температуры ΔT_{ad}, используя дискретные приближения для уравнений (3) и (4). На рис. 4 показаны результаты для ΔS_M и ΔT_{ad} в случае сильного обмена, $V/\tilde{J} = 0.4$, при $n = 0.0$, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4. Температуры максимальных значений обоих параметров приблизительно соответствуют изменению критической температуры магнитного упорядочения в зависимости от n. Ширина пиков увеличивается, а их высота уменьшается с увеличением n из-за размытия фазового FM-перехода примесями. При низких температурах имеется дополнительный пик на зависимостях ΔS_M и ΔT_{ad}, вызванный фазовым расслоением.

На рис. 5 показаны ΔS_M и ΔT_{ad} в случае слабого обмена, $V/\tilde{J} = 4$, при $n = 0.0$, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5. При $n = 0.0$ и $n = 0.1$ эти результаты практически не отличаются от случая сильного обмена. Но при $n > 0.1$ появляются качественные различия, прежде всего при низких температурах. Зарядовое упорядочение в подсистеме примесей, как мы обсуждали ранее, приводит к появлению изолированных спиновых кластеров. Это вызывает парамагнитный отклик параметров МКЭ, который дает максимальное значение $\Delta T_{ad}/J \approx 0.55$ при $n = 0.5$, $T/J = 0.14$.

4. Заключение

Мы провели численное моделирование методом Монте-Карло двумерной разбавленной системы Изинга с фиксированной концентрацией немагнитных подвижных заряженных примесей, что позволило нам получить температурные зависимости параметров МКЭ. Показано, что в случае слабого обмена при концентрациях немагнитных примесей $n > 0.1$ происходит образование изолированных спиновых кластеров в основном состоянии системы. Это приводит к отличной от нуля энтропии основного состояния системы. Продемонстрирована возможность обнаружения фрустрации основного состояния, используя данные об изменении магнитной энтропии. Вычислены параметры МКЭ для случаев сильного и слабого обмена.

Финансирование работы

Работа была выполнена при поддержке программы повышения конкурентоспособности Уральского федерального университета (Акт 211 Правительства РФ, соглашение № 02.A03.21.0006) и Министерства образования и науки РФ, проект FEUZ-2020-0054, а также при поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 18-32-00837/18.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] M.E. Zhitomirsky. Phys. Rev. B **67**, 104421 (2003).
[2] M.E. Zhitomirsky, A. Honecker. J. Status Mech.: Theory Exp. **2004**, P07012 (2004).
[3] A. Honecker, S. Wessel. Physica B **378–380**, 1098 (2006).
[4] B. Schmidt, P. Thalmeier, N. Shannon. Phys. Rev. B **76**, 125113 (2007).
[5] J.S. Amaral, J.N. Goncalves, V.S. Amaral. IEEE Trans. Magn. **50**, 1 (2014).
[6] M. Zukovic. J. Magn. Magn. Mater. **374**, 22 (2015).
[7] S. Katsura, B. Tsujiyama. Ferro- and Antiferromagnetism of Dilute Ising Model /Ed. C. Domb. Proceedings of the Conference on Phenomena in the Neighborhood of Critical Points. National Bureau of Standards, Washington, D.C. (1965). P. 219–224 .
[8] M. Blume, V.J. Emery, R.B. Griffiths. Phys. Rev. A **4**, 1071 (1971).
[9] A.S. Moskvin. J. Phys.: Condens. Matter **25**, 085601 (2013).
[10] B.G. Shen, J.R. Sun, F.X. Hu, H.W. Zhang, Z.H. Cheng. Adv. Mater. **21**, 4545 (2009).
[11] A.A. Inishev, E.G. Gerasimov, N.V. Mushnikov, P.B. Terent'ev, V.S. Gaviko. Phys. Met. Metallography **119**, 1036 (2018).
[12] H. Zhang, R. Gimaev, B. Kovalev, K. Kamilov, V. Zverev, A. Tishin. Physica B **558**, 65 (2019).
[13] Y.D. Panov, A.S. Moskvin, A.A. Chikov, I.L. Avvakumov. J. Low Temp. Phys. **185**, 409 (2016).
[14] Y.D. Panov, A.S. Moskvin, A.A. Chikov, I.L. Avvakumov. J. Supercond. Nov. Magn. **29**, 1077 (2016).
[15] Y.D. Panov, K.S. Budrin, A.A. Chikov, A.S. Moskvin. JETP Lett. **106**, 440 (2017).
[16] Y. Panov, V. Ulitko, K. Budrin, A. Chikov, A. Moskvin. J. Magn. Magn. Mater. **477**, 162 (2019).

Редактор Т.Н. Василевская