

ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД И КРОССОВЕРЫ НА КАИРСКОЙ РЕШЕТКЕ ДИПОЛЕЙ ИЗИНГА

Ю. А. Шевченко ^{a,b*}, Э. А. Лобанова ^{a,b}, И. В. Трефилов ^{a,b}, В. С. Стронгин ^{a,b},
П. А. Овчинников ^{a,b}, К. В. Неведев ^{a,b**}

^a Департамент теоретической физики и интеллектуальных технологий
Института наукоемких технологий и передовых материалов
Дальневосточного федерального университета
690922, Владивосток, Россия

^b Институт прикладной математики Дальневосточного отделения Российской академии наук
690041, Владивосток, Россия

Поступила в редакцию 31 октября 2023 г.,
после переработки 16 июля 2024 г.
Принята к публикации 19 июля 2024 г.

Методом численных расчетов Монте-Карло исследуется термодинамика систем конечного числа спинов Изинга на решетке каирского спинового льда в модели дальнедействующего диполь-дипольного взаимодействия ограниченного радиуса. Каирская решетка состоит из вершин, объединяющих три либо четыре ближайших соседних спина. В модель добавлен параметр, варьирование которого позволяет без изменения геометрии каирской решетки менять баланс энергий взаимодействия между вершинами с тремя и четырьмя ближайшими спинами. Показано, что вариативный параметр влияет на характер процесса смены фаз от ближнего порядка к беспорядку. При низких значениях этого параметра переход является кроссовером, а при его высоких значениях — фазовым переходом второго рода.

DOI: 10.31857/S0044451024110087

1. ВВЕДЕНИЕ

Искусственный спиновый лед — это группа метаматериалов, состоящих из ферромагнитных наностроек, расположенных на немагнитной подложке в виде повторяющейся решетки таким образом, что образующаяся структура проявляет коллективные магнитные свойства, которыми не обладает отдельная частица.

Геометрия решетки может накладывать ограничения на конфигурации, из-за которых не все парные магнитные взаимодействия между островками могут быть одновременно удовлетворены. Это явление называется фрустрацией, а системы — фрустрированными. Первой экспериментально созданной структурой был квадратный спиновый лед [1–3], целью которого была имитация магнитного поведения атомной решетки пироксидов $Dy_2Ti_2O_7$ и $Ho_2Ti_2O_7$ [4] на плоскости. Экспериментально на-

блюдают за намагниченностью наноразмерных островков на плоскости проще, чем за значением спинов в объемной атомной решетке материала. Дополнительно появилась возможность тонкой настройки геометрии решетки искусственного спинового льда и формы островка. Это позволяет подбирать удобные для эксперимента значения физических параметров, таких как магнитная восприимчивость, анизотропия, энергетические барьеры между похожими энергетическими конфигурациями и т. д. Позже были предложены новые геометрии двумерных спиновых льдов, не имеющие аналогов среди существующих материалов естественного происхождения.

Островки являются объемными объектами фиксированной высоты и с плоской поверхностью. В плоскости XY островок имеет овальную форму, что приводит к магнитной анизотропии формы вдоль длинной оси, делая поведение магнитного момента подобным изинговскому. Островок является односторонним, и в то же время магнитное поле, наводимое соседними островками, является достаточным для изменения ориентации магнитного момента. В экспериментальных работах геометрия и свой-

* E-mail: shevchenko.yuriy.a@gmail.com

** E-mail: nefedev.kv@dvfu.ru

ства наноостровков подобраны таким образом, чтобы имитировать поведение спина Изинга. В рамках дипольной модели магнитное состояние наноостровка может быть представлено как однодоменный наноразмерный ферромагнетик, способный взаимодействовать с другими магнитными островками посредством диполь-дипольного обмена. Ранее было показано, что модель точечных диполей хорошо описывает поведение термически активных искусственных наносистем из островков пермаллоя, например, кагоме [5], квадратного [6] и каирского [7] спиновых льдов. Далее в работе термины «спин», «диполь», и «магнитный момент» (или просто «момент») будут использоваться как синонимы.

Обычно в моделях спинового льда наноостровки лежат на ребрах решетки. Вершиной называется узел решетки, расположенный на пересечении ребер. Удобно рассматривать магнитную конфигурацию системы в контексте вершин, а именно прилегающих к ним наноостровков. Для решетки квадратного спинового льда в конфигурациях с минимальной энергией все вершины подчиняются правилу льда: два макроспина намагничены по направлению к вершине, два — от вершины. Отдельным классом являются вершинно-фрустрированные решетки [8, 9], в которых в силу топологических ограничений невозможно сделать так, чтобы все вершины удовлетворяли правилу льда. В результате, такие вершинно-неустойчивые структуры всегда содержат возбуждения. К ним относятся производные структуры спинового льда, такие как Brickwork [10, 11], Shakti [3, 12, 13], Tetris [14], Santa Fe [15], Saint George и другие [16], например Кагоме [3, 17–21] и Каирская [7, 22–25] (рис. 1).

Некоторые теоретические работы по спиновому льду рассматривают взаимодействия только между ближайшими соседями [13, 17–19, 26], при этом для упрощения расчетов дальнедействующая энергия принимается за нуль, что не всегда оправдано. Иной подход — когда авторы представляют вершинные взаимодействия в виде модели «гантелей» или «зарядов», которые также являются короткодействующими. Диполь-дипольное взаимодействие зависит от расстояния r между диполями и в некоторых случаях может приводить к дальнедействующему упорядочению [3, 27]. Это было показано для трехмерной тетраэдрической решетки пирохлора [28, 29], где число соседей вокруг отдельно взятого диполя изменяется пропорционально r^3 , а дипольная энергия одной пары — пропорционально r^{-3} . Таким образом, суммарная энергия, наведенная дальними соседями, имеет тот же порядок и может кон-

куруировать с энергией ближайших соседей. Число соседей в двумерной решетке растет гораздо медленнее, пропорционально r^2 .

2. ФИЗИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Мы рассматриваем систему магнитных моментов (точечных диполей) на каирской решетке [7, 22–25]. Схема изображена на рис. 1. Решетка состоит из неправильных пятиугольников с четырьмя сторонами длины a и одной стороной длины b . Два угла пятиугольника являются прямыми. Решетка имеет параметр периодичности $k = \sqrt{8a^2 - b^2} + b$, одинаковый по обоим осям плоскости XY . Система состоит из $N = 20L^2$ одинаковых спинов, где L — линейный размер, либо количество элементарных ячеек вдоль одной из осей. Одна элементарная ячейка состоит из 20 спинов.

Ферромагнитные наноостровки расположены на всех ребрах решетки по одному островку на ребро. Островки имеют овальную форму и объем $300 \times 100 \times 2.6 \text{ нм}^3$. Длинная сторона овала направлена вдоль ребра решетки. Наноостровки состоят из пермаллоя и не имеют кристаллографической оси анизотропии. На рис. 1 наноостровки изображены серыми овалами на нескольких ребрах в качестве примера.

Как показано в работе [1], островки всегда являются однодоменными, благодаря небольшому раз-

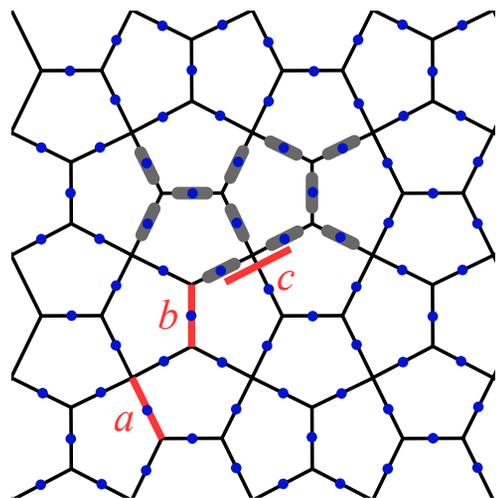


Рис. 1. Схематичное изображение каирской решетки. Синие точки — расположение точечных диполей в исследуемой модели, серые овалы — пример расположения наноостровков в соответствующих работах [7, 30, 31]. Наноостровки расположены на всех ребрах решетки, на рисунке приведена часть из них. Красные (жирные) линии a , b , c — параметры каирской решетки

меру и большому расстоянию между островками. Анизотропия формы обеспечивает намагниченность вдоль длинной оси. В нашей модели каждый наностровок рассматривается как точечный магнитный диполь, подобный изинговскому, расположенный в геометрическом центре наностровка. Под «подобным изинговскому» подразумевается возможность диполя намагничиваться только вдоль легкой оси анизотропии наностровка.

Неравновесные термодинамические эффекты, такие как коэрцитивная сила островка и эффекты Стонера–Вольфарта [32], не рассматриваются в этой работе. Подразумевается, что все релаксационные неравновесные процессы завершены во время численных экспериментов. Оценки времени суперпарамагнитного перехода приведены в приложении.

Энергия взаимодействия между диполями i и j определяется как

$$E_{ij,dip} = s_i s_j \left(\frac{(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j)}{|\mathbf{r}_{ij}|^3} - 3 \frac{(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{|\mathbf{r}_{ij}|^5} \right), \quad (1)$$

где все векторные переменные приведены к единичной длине, а размерные коэффициенты вынесены в параметр D уравнения (2); \mathbf{m}_i — момент единичной длины, направление которого для каждого диполя определено геометрией решетки. Момент имеет только два возможных противоположных направления, которые определяются дискретными переменными Изинга $s_i = \pm 1$; \mathbf{r}_{ij} — радиус-вектор, нормированный на параметр решетки a так, чтобы для двух точек i и j , находящихся друг от друга на расстоянии a , выполнялось условие $|\mathbf{r}_{ij}| = 1$.

По аналогии с [7, 30, 31], в данной работе используются фиксированные значения параметров решетки $a = 472$ нм, $b = 344$ нм. Для каирской решетки есть два вида вершин, расположенных на пересечении трех, либо четырех ребер, что формирует спиновые структуры «креста» и «треугольника», подобные решетке квадратного и гексагонального спинового льда соответственно [27]. Это расширяет многообразие наблюдаемых явлений рассматриваемой модели. Все парные взаимодействия между спинами в узле решетки не могут быть одновременно удовлетворены, что приводит к эффектам фрустраций [3]. Положение островков вдоль ребер длины a задается параметром c . Увеличение c приводит к увеличению энергий парных взаимодействий в треугольных узлах решетки и уменьшению в крестах и наоборот. В случае, когда $c/a = 1$, спины расположены в середине ребра длины a . Положение спинов

на ребре b всегда фиксировано в середине. В работах [7, 30, 31] рассматривается только параметр $c = 376$ нм, хотя он может варьироваться в пределах $300 \text{ нм} < c < 644 \text{ нм}$. В крайних случаях островки будут располагаться друг к другу вплотную, что может привести к нарушению симметрии магнитных конфигураций, которое описано в [33]. Здесь мы рассмотрим влияние параметра c на термодинамические характеристики каирского дипольного спинового льда в интервале значений от $376 \text{ нм} \approx 0.797a$ до $553 \text{ нм} \approx 1.129a$.

В работе [30] было показано, что низкотемпературный фазовый переход от дальнего порядка к порядку в подрешетках происходит благодаря диполь-дипольному взаимодействию только между парами спинов, направленными вдоль вертикальных либо горизонтальных (в плоскости решетки) ребер (далее — горизонтальные и вертикальные спины). Такие ребра являются основанием пятиугольников и имеют длину b на рис. 1. Указанные спины удалены друг от друга на расстояние $d = \sqrt{2}k/2 \approx 2.448a$. Ближайшие горизонтально и вертикально направленные спины напрямую не взаимодействуют друг с другом, $E_{ij,dip} = 0$. В этой работе мы не учитываем энергии парных взаимодействий, для которых $|\mathbf{r}_{ij}| > d/a$.

В модель добавлено слабое вертикальное магнитное поле $\mathbf{H} = \{0, H_y\}$, где $H_y = 1.5 \cdot 10^{-7}$, без которого невозможно вычисление магнитной восприимчивости. Энергия системы определяется как

$$E = D \sum_{[i,j]} E_{ij,dip} - \frac{\mu_0 \mu}{k_B} \sum_i s_i (\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{H}), \quad (2)$$

где сумма $[i, j]$ взята по всем парам диполей, удаленных друг от друга на расстояние, не превышающее d . Константа H_y представлена в безразмерных величинах по аналогии с $\mathbf{m}_{y,i}$;

$$D = \mu_0 \mu^2 a^{-3} k_B^{-1}$$

— размерный коэффициент, μ_0 — магнитная постоянная, μ — намагниченность насыщения наностровка, a — параметр решетки, описанный выше, k_B — постоянная Больцмана. Все результаты в данной работе будут представлены в единицах энергий D и единицах длины a . Представленные в единицах a значения округлены до трех знаков после запятой. Для перехода к размерной системе исчисления необходимо определить параметры μ и a с учетом геометрии магнитной системы.

В нашей модели были использованы периодические граничные условия по осям [01] и [10] с целью избавления от эффекта границ.

Для вычисления термодинамических средних значений используется канонический односпиновый алгоритм Метрополиса [34–36]. Несмотря на его простоту, он все ещё остается популярным методом статистического исследования в совершенно разных направлениях науки. Для каждой рассматриваемой в работе температуры использовалось 10^5 стабилизирующих Монте-Карло шагов и 10^6 шагов для вычисления термодинамических средних. Предварительная температурная стабилизация исследуемой системы позволяет достичь термодинамического равновесия на момент начала сбора статистики. Под шагом Монте-Карло подразумевается N попыток Монте-Карло сменить знак случайного s_i . Все вычисления начинаются с одного из основных состояний решетки. Под основным состоянием понимается такой набор значений s_i , при которых можно получить минимально возможное E . При этом минимальному значению E может соответствовать несколько конфигураций s_i . Основное состояние является наиболее вероятным при $T \rightarrow 0$. Термализация системы при повышении T менее требовательна к вычислительным ресурсам, чем при понижении T .

Конфигурации основных состояний для рассматриваемой системы приведены в работах [30, 31]. Все основные состояния для модели дальнего действия делятся на две группы: с вертикально либо горизонтально направленным вектором намагниченности. Конфигурации этих групп разделены друг от друга энергетическим барьером, который не преодолим для алгоритма односпинового Метрополиса. В данной статье мы рассматриваем только группу состояний с вертикальным направлением вектора намагниченности в основном состоянии, подразумевая, что поведение другой группы идентично, так как решетка симметрична при вращении на 90° . По этой же причине в модель добавлено только магнитное поле, направленное вдоль оси Y .

3. ТЕПЛОЕМКОСТЬ КАИРСКОЙ РЕШЕТКИ

На рис. 2 показана теплоемкость каирской решетки с $N = 9860$ диполей, полученная методом Метрополиса. Теплоемкость получена как

$$C(T) = \frac{\langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2}{k_B T^2 N}. \quad (3)$$

Скобки $\langle \dots \rangle$ обозначают термодинамическое усреднение по Гиббсу для заданной T . Данные показаны при $c = 0.797a, 0.966a, 1.172a$ разными линиями. На этом и последующих рисунках точки отображают значения по оси абсцисс, для которых выполнялись Монте-Карло вычисления. Точки последо-

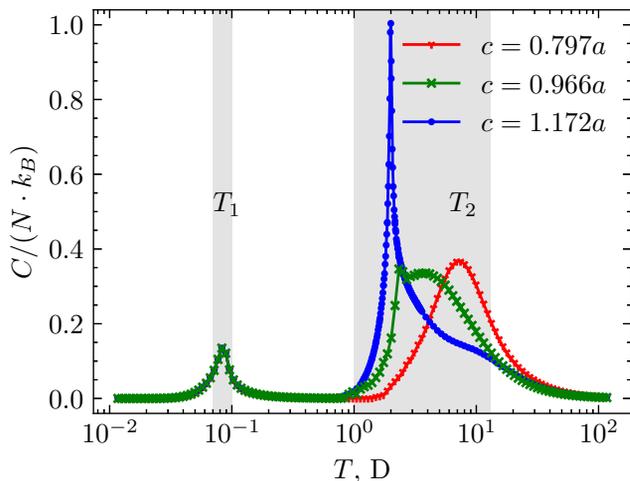


Рис. 2. Теплоемкость $N = 9860$ спинов каирского спинового льда для параметров решетки $c = 0.797a, 0.966a, 1.172a$. Серым цветом отмечены температурные зоны T_1 и T_2 , при которых теплоемкость испытывает низкотемпературный и высокотемпературный максимум, соответственно. Данные рассчитаны методом Метрополиса

вательно соединены линиями для улучшения визуального восприятия. Для теплоемкости $c = 0.797a$ в температурном интервале $1D < T < 3D$ алгоритм Метрополиса испытывает известную проблему критического замедления [37]. Эта проблема решена путем запуска алгоритма из различных случайных высокоэнергетических конфигураций и усреднения значений теплоемкости между запусками в заданной области температур.

Теплоемкость имеет два выраженных пика при температурах, обозначенных далее как T_1 и T_2 . Низкотемпературный пик $C(T_1)$ не зависит от c . Как показано в [30], он обусловлен исключительно парными взаимодействиями между вертикальными либо горизонтальными спинами, удаленными на расстояние d , которое зависит только от параметров решетки a и b , и не зависит от c .

Высокотемпературные максимумы теплоемкости имеют место в температурном интервале $1D < T < 12D$. В зависимости от параметра c меняется их форма от гладкого ($c = 0.797a$) до острого ($c = 1.172a$). При средних значениях ($c = 0.966a$) высокотемпературный пик $C(T_2)$ имеет сразу два явных перегиба гладкой и острой формы. Далее мы рассмотрим причины такого поведения, покажем зависимость высоты и температуры высокотемпературного пика от параметра c , проведем корреляционный анализ конфигураций в данных температурных зонах и покажем размерную зависимость высоты и температуры обоих пиков при разных c .

4. РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ

Согласно классификации фазовых переходов, в том числе Эренфеста [38], скачкообразное поведение производных статистической суммы свидетельствует о наличии фазового перехода при $N \rightarrow \infty$. Порядок производной определяет род фазового перехода. Точка скачка является (критической) температурой смены фаз. Но существуют случаи, когда фазовый переход происходит не в конкретной температурной точке, а в температурной зоне. Известные термодинамические функции не испытывают скачков, но это не значит, что таких функций не существует. Для обозначения этого эффекта мы используем общепринятый термин кроссовер (см. [39] и § 3.11 в работе [40]).

Для однозначной классификации и объяснения наблюдаемых на рис. 2 пиков теплоемкости необходимо рассмотреть модель с $N \rightarrow \infty$ взаимодействующими спинами. Решение такой задачи невозможно при использовании алгоритмов Метрополиса, так как они работают с системами конечного размера. Мы рассмотрим изменение пиков теплоемкости и критических температур при разных значениях N и экстраполируем поведение на $N \rightarrow \infty$.

На рис. 3 показаны значения $C(T_1)$ (верхний рисунок) и температуры T_1 (нижний рисунок), при которых низкотемпературный пик теплоемкости имеет максимальное значение, в зависимости от N в ин-

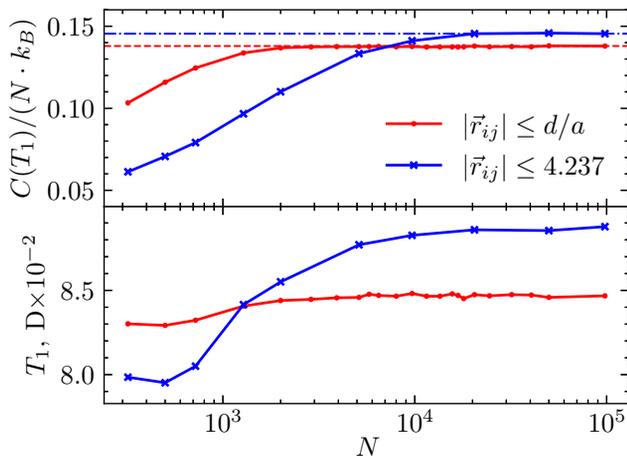


Рис. 3. Значения теплоемкости (верхний рисунок) и температуры (нижний рисунок), при которых наблюдается низкотемпературный пик теплоемкости, в зависимости от числа частиц N . Данные приведены для модели с максимальным радиусом взаимодействия d (красная линия с круглыми точками) и модели с радиусом $4.237a$ [30] (синяя линия с крестами). Для обеих моделей штриховой и штрихпунктирной линиями показаны значения пиков теплоемкости $C(T_1)/N = 0.1379$ и 0.1455 при максимальном N соответственно

тервале $320 < N < 98000$ спинов. Ввиду дискретного характера вычислений по температуре функции теплоемкости аппроксимировались кривой 15-го порядка с помощью метода наименьших квадратов с целью получения точки максимума теплоемкости с высокой точностью. На рисунке приведены данные для модели с ограниченным радиусом взаимодействия $|\mathbf{r}_{ij}| \leq d$ (красная линия с круглыми точками). Для сравнения на рисунок добавлены данные из работы [30] с увеличенным радиусом взаимодействия $|\mathbf{r}_{ij}| \leq 4.237a$ (синяя линия с крестиками). В работе [30] опубликованы данные для $N < 9680$, для точек представлена огибающая логарифмическая функция, расходящаяся при $N \rightarrow \infty$. В данной работе благодаря доступным вычислительным мощностям размер системы увеличен в 10 раз и результаты расчетов представлены до $N < 98000$.

В данном интервале обе функции $C(T_1)/N$ выходят на плато, теплоемкость при $N = 98000$ имеет значения $C(T_1)/N = 0.1379$ и 0.1455 для красной и синей линий соответственно. Эти величины обозначены штриховой и штрихпунктирной линиями на рис. 3. Поведение $C(T_1)/N$ для обоих радиусов взаимодействия качественно совпадает. Но для $|\mathbf{r}_{ij}| \leq d$ функция $C(T_1)/N$ выходит на плато при меньшем N , имеет меньшее значение и более низкую температуру T_1 .

Температура T_1 тоже выходит на плато при тех же значениях N , что и $C(T_1)$. Как было отмечено в предыдущем разделе и в статье [30], низкотемпературный пик теплоемкости обусловлен исключительно парными взаимодействиями между вертикальными либо горизонтальными спинами, взаимодействие между которыми имеет схожий характер с моделью Изинга на простой квадратной решетке. Вариант с $|\mathbf{r}_{ij}| \leq d$ подобен ферромагнитной модели Изинга с ближайшими четырьмя соседями. Вариант $|\mathbf{r}_{ij}| \leq 4.237a$ учитывает и более дальние пары, не все из которых ферромагнитные. Рисунок 3 показывает, что учет более дальних взаимодействий увеличивает длину межспиновых корреляций, влияет на абсолютное значение теплоемкости в критической точке и критическую температуру, но в целом не меняет характера фазового перехода.

На рис. 4 приведена зависимость критических температур и значений низкотемпературного пика магнитной восприимчивости от N . Восприимчивость определяется как

$$\chi(T) = \frac{\langle |\mathbf{m}|^2 \rangle - \langle \mathbf{m} \rangle^2}{k_B T N}, \tag{4}$$

где вектор намагниченности определяется как сум-

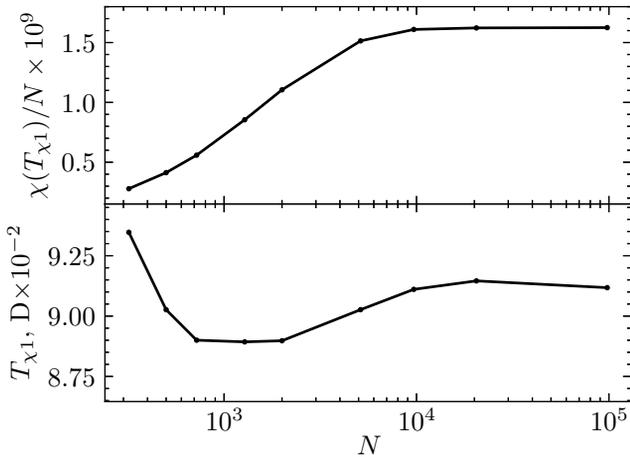


Рис. 4. Величина (верхний рисунок) низкотемпературного пика магнитной восприимчивости χ и его температурное положение (нижний рисунок) в зависимости от числа частиц N

марный вектор всех магнитных моментов системы:

$$|\mathbf{m}| = \left| \sum_j^N s_j \mathbf{m}_j \right|. \quad (5)$$

Пример $\chi(T)$ для $c = 0.797a$ опубликован в работе [30](рис. 7). Для других рассматриваемых в данной работе значений c восприимчивость $\chi(T)$ не имеет качественных отличий. Высокое значение T_{χ_1} при малых N мы связываем с эффектом конечного размера, так как в низкотемпературном переходе участвует $1/5$ всех спинов системы [30].

Функция $\chi(T_{\chi_1})/N$ от N также выходит на плато при $N > 9680$. Но пик приходится на более высокие температуры, чем пик теплоемкости. Повышение температуры T_{χ_1} при низких значениях N обусловлено размерным эффектом.

В результате анализа магнитных конфигураций в области низкотемпературного пика установлено [30], что причиной пика является разрушение порядка между спинами, расположенными на вертикальных и горизонтальных ребрах длины b . Параметр c не влияет на положение этих спинов на ребрах решетки и не влияет на параметр решетки k . Другие спины в основном состоянии упорядочены таким образом, что для любого горизонтального либо вертикального спина i выполняется условие

$$\sum_j E_{ij, dip} = 0,$$

где в j учитываются только спины, лежащие на ребрах a . Значение любого вертикального либо горизонтального спина влияет только на энергии парных взаимодействий таких же спинов, и это упорядочение разрушается при T_1 .

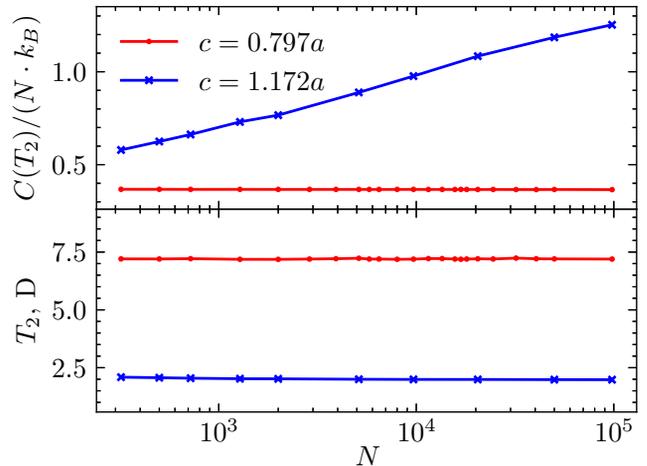


Рис. 5. Значения теплоемкости (верхний рисунок) и температуры (нижний рисунок), при которых наблюдается высокотемпературный пик теплоемкости, в зависимости от числа частиц N при параметре решетки $c = 0.797a$ и $c = 1.172a$

На рис. 5 приведен график $C(T_2)$ (верхний рисунок) и температура T_2 (нижний рисунок) в зависимости от N , меняющегося в интервале $320 < N < 98000$ спинов. Данные приведены для параметров решетки $c = 0.797a$ (красная линия с круглыми точками) и $c = 1.172a$ (синяя линия с крестами). В первом случае значение теплоемкости в пике не зависит от N и имеет значение

$$C(T_2)/N = 0.366 \pm 0.001.$$

Во втором случае $C(T_2)/N$ имеет логарифмическую зависимость от N , и в пределе при $N \rightarrow \infty$ может расходиться.

5. ЭФФЕКТ ПАРАМЕТРА РЕШЕТКИ

Как было описано выше, параметр c влияет на расстояние между двумя ближайшими коллинеарными спинами. Увеличение c приводит к увеличению энергий парных взаимодействий в треугольных узлах решетки и уменьшению в крестах. Само по себе разрушение магнитного порядка внутри крестов и треугольников требует энергетических затрат и должно приводить к двум пикам теплоемкости при температурах, пропорциональных энергиям парных взаимодействий внутри крестов и треугольников соответственно.

Как видно на рис. 2, при низких значениях c теплоемкость имеет один гладкий высокотемпературный пик. По мере увеличения c , при достижении критического значения, равного примерно $0.966a$ (456 nm), в теплоемкости появляется второй острый высокотемпературный пик, который виден на зеле-

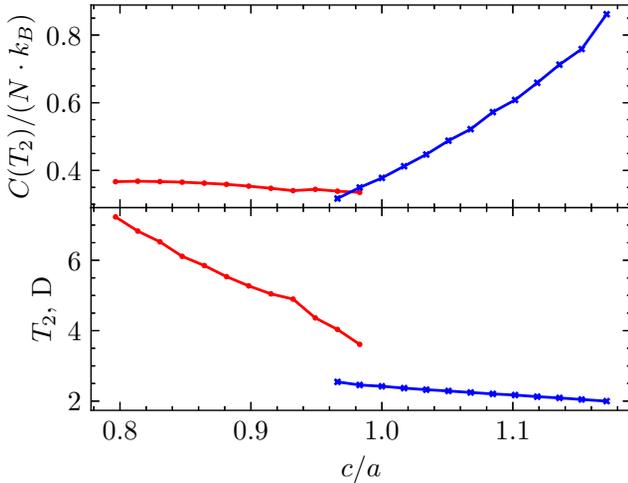


Рис. 6. Зависимость теплоемкости в высокотемпературном пике (верхний рисунок) и температуры этого пика от параметра решетки c в интервале от $0.797a$ до $1.172a$ при $N = 5120$. Красной линией с круглыми точками обозначены данные для пика-кроссовера, синей линией с крестами обозначен пик, разделяющий термодинамические фазы

ной линии с крестами на рис. 2. При дальнейшем увеличении c высота острого пика увеличивается, и гладкого — уменьшается до состояния, когда его невозможно однозначно определить.

На рис. 6 изображены значения теплоемкости и температуры двух описанных высокотемпературных пиков. Линии отмечены разными цветами, а в районе $c = 0.966a$ присутствуют одновременно два пика.

Введем параметр корреляций, который учитывает только знак перед энергией парных взаимодействий, абсолютное значение которого не зависит от параметра c :

$$G = \sum_{[i,j]} \frac{E_{i,j}}{|E_{i,j}|} / n. \quad (6)$$

Сумма $[i, j]$ учитывает только уникальные парные взаимодействия, для которых необходимо выполнить корреляционный анализ, n — количество таких пар. Определим, что параметр G_t учитывает только парные взаимодействия во всех треугольниках. Не существует такой конфигурации треугольника, в котором для всех парных взаимодействий будет $E_{ij} < 0$. В конфигурации с минимальной энергией для двух пар будет $E_{ij} < 0$ и для одной пары $E_{ij} > 0$. В конфигурации с максимальной энергией все три пары будут с $E_{ij} > 0$. Значения параметра G_t для отдельно взятого треугольника будут варьироваться от $-1/3$ в конфигурации с минимальной энергией до 1 в конфигурации с максимальной энергией.

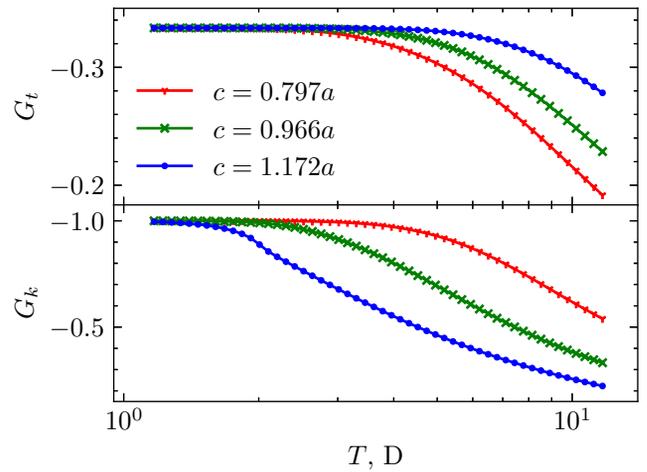


Рис. 7. Температурная зависимость корреляций внутри треугольников G_t и крестов G_k для параметров решетки $c = 0.797a, 0.966a, 1.172a$ и $N = 5120$ спинов

Определенный по аналогии с G_t параметр G_k учитывает только ближайшие парные взаимодействия во всех крестах, удаленных на расстояние $\sqrt{2}c$. Для креста возможно создать такую конфигурацию, в которой все четыре парных взаимодействия будут с $E_{ij} < 0$, поэтому значения параметра G_k для отдельно взятого креста будут варьироваться от -1 в конфигурации с минимальной энергией до 1 в конфигурации с максимальной энергией.

На рис. 7 представлены термодинамически усредненные по Гиббсу параметры G_t (верхняя половина) и G_k (нижняя половина) как функция температуры для параметров решетки $c = 0.797a, 0.966a, 1.172a$ и $N = 5120$ спинов. Представлены данные для температур, при которых теплоемкость испытывает высокотемпературный пик. Изменение значения $G(T)$ свидетельствует о влиянии соответствующей температуры на магнитное упорядочение крестов либо треугольников.

Для параметра $c = 0.797a$ уровень корреляций в треугольниках и крестах снижается при близких друг к другу температурах. Поскольку все спины, лежащие на ребрах длины a , одновременно присутствуют и в треугольниках, и в крестах, то случайные температурные флуктуации отдельных спинов решетки приводят к исчезновению магнитного упорядочения одновременно в смежных с данными спинами крестах и в треугольниках, так как энергии ближайших парных взаимодействий в крестах и треугольниках примерно равны по модулю. Такое поведение соответствует определению кроссовера, когда смена фаз от замороженного порядка к беспорядку приходится на температурную зону, а не на особую температурную точку.

При увеличении параметра c уменьшается расстояние между спинами треугольников, вследствие чего увеличивается модуль энергий парных взаимодействий внутри треугольников, что приводит к повышению температуры, необходимой для разрушения порядка. С другой стороны, увеличение параметра c приводит к увеличению расстояния между спинами крестов. Как следствие, при повышении c температура перегиба G_t повышается, а G_k понижается. При параметре $c = 1.172a$ разница в температурах становится существенной. Параметр G_k для $c = 1.172a$ испытывает перегиб в области высокотемпературного пика теплоемкости из рис. 2. В этом интервале температур параметр G_t принимает минимально возможное значение. Это значит, что магнитное упорядочение пропадает в крестах, но сохраняется во всех треугольниках. Этого можно достичь, только если температурные флуктуации будут приводить к перемагничиванию всего треугольника вместо отдельно взятого диполя. Перемагничивание треугольника имеет более высокий энергетический барьер по сравнению с перемагничиванием одного диполя. Следствием чего является острый характер высокотемпературного пика на рис. 2.

Отметим, как параметр c влияет на парные энергетические взаимодействия между спинами треугольника. Уменьшение c двигает два из трех спинов вдоль ребра решетки длины a . Третий спин треугольника остается на месте, поэтому энергии парных взаимодействий в треугольнике изменяются в разных пропорциях. Углы треугольника не равны между собой. Парные взаимодействия внутри треугольника разрушаются при разных температурах, поэтому падение $G_t(T)$ на рис. 7 не приводит к острому пику теплоемкости при соответствующей температуре. В отличие от треугольника ребра креста расположены под прямым углом друг к другу, параметр c одинаково влияет на все спины креста, все четыре энергии парных взаимодействий внутри креста равны по модулю. Это дополнительно объясняет острый характер соответствующего пика теплоемкости.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы исследовали температурное поведение теплоемкости модели подобных изинговским диполей на каирской решетке. Согласно универсальной классификации Эренфеста, фазовый переход второго рода сопровождается расходимостью вторых производных внутренних параметров системы при стремлении к бесконечности числе частиц в системе. Для рассматриваемой решетки конечного размера

наблюдаются два пика теплоемкости при постановке численных экспериментов алгоритмом Метрополиса. В работе [30] было показано, что низкотемпературный пик теплоемкости не имеет тенденции к расходимости и обусловлен исключительно переходом порядок–беспорядок между спинами, связанными только дальним диполь-дипольным взаимодействием. Другими словами, низкотемпературный пик обусловлен исчезновением/возникновением дальнего упорядочения.

Согласно классификации фазовых переходов (см. §3 в работе [41]), системы одного класса универсальности обладают подобным набором фаз, а процесс смены фаз можно описать универсальными критическими индексами. Класс универсальности нашей системы определяют два параметра: размерность пространства и число степеней свободы одного спина. Мы показали, что параметр решетки c , не определяющий класс универсальности, при других неизменных параметрах системы может менять характер фазового перехода в данной классификации.

При низком значении параметра c система испытывает «фазовый» переход, при котором пропадает ближнее магнитное упорядочение внутри крестов и треугольников в температурной зоне, а не при определенной критической температуре. Это приводит к отсутствию сингулярности теплоемкости во всем температурном интервале при $N \rightarrow \infty$, а такой переход называется кроссовером [39, 40]. Подобный эффект происходит, например, в ультрахолодных газах Ферми, где при изменении силы взаимодействия система переходит из состояния конденсата Бозе–Эйнштейна в состояние Бардина–Купера–Шриффера [42]. Другим примером являются магнитные сплавы с магнитными примесями, в которых исследуется эффект Кондо [43], где обычная жидкая фаза Ферми (слабо связанная с примесями) переходит в «локальную» жидкую фазу Ферми, в которой электроны проводимости образуют сильно связанные спин-синглеты с электронами примесей, без наличия явного фазового перехода.

При высоком значении параметра c система испытывает фазовый переход «ближний порядок–беспорядок» в зоне высоких температур. Он характеризуется расхождением теплоемкости в определенной температурной точке при $N \rightarrow \infty$ и обусловлен исчезновением порядка в крестах.

Таким образом, мы показали существование магнитной системы, в которой изменение одного параметра решетки приводит к качественному изменению ее термодинамического поведения.

Благодарности. Авторы выражают благодарность дирекции Института наукоемких технологий и передовых материалов ДВФУ за неоценимый вклад в «развитие» суперкомпьютерного направления на Дальнем Востоке.

Финансирование. Представленные в работе результаты были получены на суперкомпьютерном вычислительном кластере Института прикладной математики ДВО РАН. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 23-22-00328, <https://rscf.ru/project/23-22-00328/>.

ПРИЛОЖЕНИЕ

В доказательство возможности экспериментального воспроизведения показанных в данной работе эффектов покажем, что среднее время релаксации наночастицы с рассматриваемой геометрией находится в типичных для эксперимента пределах наблюдения. Время магнитной релаксации τ суперпарамагнетика следует закону Нееля – Аррениуса

$$\tau^{-1} = f_0 \exp(-\Delta U/k_B T), \quad (7)$$

где k_B — постоянная Больцмана, T — температура, ΔU , f_0 — предэкспоненциальный множитель или частотный фактор, который для наночастиц пермаллоя составляет 10^{12} с^{-1} [5, 44, 45]. Поведение наночастицы, подобное изинговскому, достигается за счет анизотропии формы при условии отсутствия других источников магнитной анизотропии (пермаллой).

Рассмотрим время релаксации отдельно взятой наночастицы без влияния внешних полей. Тогда $\Delta U = KV$, где V — объем частицы, K — плотность энергии магнитной анизотропии. Анизотропия формы вдоль оси $d \in \{x, y, z\}$ определяется как [46]

$$K_d = \frac{1}{2} \mu_0 N_d M^2,$$

где μ_0 — магнитная постоянная, M — остаточная намагниченность материала, N — размагничивающий фактор.

При комнатной температуре $T = 290 \text{ К}$ для объемного пермаллоя $M = 800 \text{ кА/м}$ [7], но для пленки толщиной 2.6 нм $M = 100 \text{ кА/м}$ [5].

Методика определения N_d приведена в работе [47] для эллипсоидов и в [48] уточнена для призм. $N_d = 0.14036$ по направлению вдоль длинной стороны призмы.

Величина энергетического барьера, вызванного анизотропией формы без влияния других сил, составит $\Delta U = 6.87 \cdot 10^{-20} \text{ Дж}$, или 0.43 эВ , что соответствует $\tau = 2.89 \cdot 10^{-5} \text{ с}$.

Учтем среднюю энергию диполь-дипольного взаимодействия из результатов моделирования Монте-Карло:

$$\Delta U = KV + \langle E \rangle / N,$$

где E определена формулой (2), а значение $\langle E \rangle$ взято по модулю. Получим $\langle E \rangle / N = 8.09 \cdot 10^{-21} \text{ Дж}$, или 0.05 эВ , что соответствует $\tau = 2.18 \cdot 10^{-4} \text{ с}$.

При понижении T увеличивается M пермаллоя и, как следствие, увеличивается ΔU , что приведет к стремительному увеличению τ . Оценка зависимости M от T для наночастицы является предметом дополнительных исследований и выходит за рамки данной статьи. Для примера при $T = 250 \text{ К}$ и $M = 120 \text{ кА/м}$ получим $\tau = 38 \text{ с}$.

Представленные оценки имеют порядки секунд и соответствуют эксперименту [49] (рис. 4b).

ЛИТЕРАТУРА

1. R. F. Wang, C. Nisoli, R. S. Freitas et al., *Nature* **439**, 303 (2006).
2. C. Nisoli, R. Moessner, P. Schiffer, *Rev. Mod. Phys.* **85**, 1473 (2013)
3. Y. Shevchenko, A. Makarov, and K. Nefedev, *Phys. Lett. A* **381**, 428 (2017).
4. Y. Shevchenko, K. Nefedev, and Y. Okabe, *Phys. Rev. E* **95**, 052132 (2017).
5. A. Farhan, P. M. Derlet, A. Kleibert et al., *Nature Phys.* **9**, 375 (2013).
6. A. Han, P. M. Derlet, A. Kleibert et al., *Phys. Rev. Lett.* **111**, 057204 (2013).
7. M. Saccone, K. Hofhuis, Y. Huang et al., *Phys. Rev. Mater.* **3**, 104402 (2019).
8. M. J. Morrison, T. R. Nelson, and C. Nisoli, *New J. Phys.* **15**, 045009 (2013).
9. S. H. Skjærvø, C. H. Marrows, R. L. Stamps et al., *Nat. Rev. Phys.* **2**, 13 (2020).
10. J. Park, B. L. Le, J. Sklenar et al., *Phys. Rev. B* **96**, 024436 (2017).
11. Y. Li, T. X. Wang, Z. T. Hou et al., *Phys. Lett. A* **380**, 2013 (2016).
12. G. W. Chern, M. J. Morrison, and C. Nisoli, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 177201 (2013).
13. I. Gilbert, G. W. Chern, S. Zhang et al., *Nature Phys.* **10**, 670 (2014).

14. I. Gilbert, Y. Lao, I. Carrasquillo et al., *Nature Phys.* **12**, 162 (2015).
15. X. Zhang, A. Duzgun, Y. Lao et al., *Nature Communications* **12**, (2021).
16. H. Stopfel, U. B. Arnalds, A. Stein et al., *Phys. Rev. Mater.* **5**, 114410 (2021).
17. G. W. Chern, P. Mellado, and O. Tchernyshyov, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 207202 (2011).
18. G. W. Chern and O. Tchernyshyov, *Phil. Trans. Royal Soc. A: Math., Phys. Engin. Sci.* **370**, 5718 (2012).
19. G. Möller and R. Moessner, *Phys. Rev. B* **80**, 140409 (2009).
20. A. G. Makarov, K. Makarova, Y. A. Shevchenko et al., *JETP Lett.* **110**, 702 (2019).
21. U. B. Arnalds, A. Farhan, R. V. Chopdekar et al., *Appl. Phys. Lett.* **101**, 112404 (2012).
22. I. Rousochatzakis, A. M. Läuchli, and R. Moessner, *Phys. Rev. B* **85**, 104415 (2012).
23. A. M. Abakumov, D. Batuk, A. A. Tsirlin et al., *Phys. Rev. B* **87**, 024423 (2013).
24. M. Rojas, O. Rojas, and S. M. Souza, *Phys. Rev. E* **86**, 051116 (2012).
25. A. A. Tsirlin, I. Rousochatzakis, D. Filimonov et al., *Phys. Rev. B* **96**, 094420 (2017).
26. C. Castelnovo, R. Moessner, and S. L. Sondhi, *Nature* **451**, 42 (2008).
27. Ю. А. Шевченко, А. Г. Макаров, П. Д. Андриященко и др., *ЖЭТФ* **151**, 1146 (2017).
28. R. G. Melko, B. C. Hertog, and M. J. P. Gingras, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 067203 (2001).
29. R. G. Melko and M. J. P. Gingras, *J. Phys.: Cond. Matt.* **16**, 1277 (2004).
30. Y. Shevchenko, V. Strongin, V. Kapitan et al., *Phys. Rev. E* **106**, 064105 (2022).
31. K. Makarova, V. Strongin, I. Titovets et al., *Phys. Rev. E* **103**, 042129 (2021).
32. E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Phil. Trans. Royal Soc. London. Series A, Math. Phys. Sci.* **240**, 599 (1948).
33. S. Gliga, A. Kákay, L. J. Heyderman et al., *Phys. Rev. B* **92**, 060413 (2015).
34. N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth et al., *J. Chem. Phys.* **21**, 1087 (1953).
35. W. K. Astings, *Biometrika* **57**, 97 (1970).
36. K. Makarova, A. Makarov, V. Strongin et al., *J. Comp. Appl. Math.* **427**, 115153 (2023).
37. H. Gould and J. Tobochnik, *Comp. Phys.* **3**, 82 (1989).
38. А. А. Гухман, *Об основаниях термодинамики, ЛКИ* (2010).
39. S. Gluzman and V. I. Yukalov, *Phys. Rev. E* **58**, 4197 (1998).
40. H. Nishimori and G. Ortiz, *Elements of Phase Transitions and Critical Phenomena*, Oxford University Press (2010).
41. C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland, and G. Lauhoff, *Rep. Prog. Phys.* **71** 056501 (2008).
42. T. Bourdel, L. Khaykovich, J. Cubizolles et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 050401 (2004).
43. W. G. Van der Wiel, S. D. Franceschi, T. Fujisawa et al., *Science* **289**, 2105 (2000).
44. P. Lubitz, M. Rubinstein, J. J. Krebs et al., *J. Appl. Phys.* **11**, 6901 (2001).
45. A. Farhan, A. Scholl, C. Petersen et al., *Nature Commun.* **1**, 12635 (2016).
46. W. F. Brown Jr. and A. H. Morrish, *Phys. Rev.* **4**, 1198 (1957).
47. J. A. Osborn, *Phys. Rev.* **11–12**, 351 (1945).
48. A. Aharoni, *J. Appl. Phys.* **6**, 3432 (1998).
49. M. Saccone, A. Scholl, S. Velten et al., *Phys. Rev. B* **22**, 224403 (2019).