

КРИТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА МОДЕЛЕЙ МАЛЫХ МАГНИТНЫХ ЧАСТИЦ ФЕРРОМАГНЕТИКА MnF_2

В. А. Мутайламов^{a,}, А. К. Муртазаев^{a,b}, М. А. Магомедов^{a,b}*

*^a Институт физики Дагестанского научного центра Российской академии наук
367003, Магачкала, Россия*

*^b Дагестанский государственный университет
367025, Магачкала, Россия*

Поступила в редакцию 5 декабря 2013 г.

Методом Монте-Карло исследовано статическое критическое поведение моделей малых магнитных частиц реального двухподрешеточного антиферромагнетика MnF_2 с учетом взаимодействия вторых ближайших соседей. Для оценки влияния размеров частиц на характер их критического поведения рассматривались системы с открытыми границами. Исследовано поведение термодинамических функций в области фазового перехода. Показано, что данных по максимумам температурных зависимостей теплоемкости и магнитной восприимчивости недостаточно для однозначного определения эффективной температуры фазового перехода в моделях малых магнитных частиц. Для этого необходимо дополнительное исследование пространственной ориентации вектора намагниченности подрешетки (подрешеток) исследуемых моделей.

DOI: 10.7868/S004445101406007X

1. ВВЕДЕНИЕ

В современной физике конденсированного состояния особое внимание уделяется изучению фазовых переходов и критических свойств малых частиц магнитных материалов, содержащих от нескольких сотен до нескольких десятков тысяч атомов (спинов, ионов). Такие системы обладают целым рядом интересных свойств, которыми не обладают макроскопические объекты. Большой интерес представляет изучение влияния конечных размеров малых частиц на те или иные физические свойства материала в области фазового перехода.

При теоретическом изучении малых частиц, как правило, рассматриваются очень упрощенные модели, хотя они и достаточно разнообразны. Во многих случаях, несмотря на простоту модели, аналитические теории сталкиваются с большими трудностями. Кроме того, для таких систем невозможен переход к термодинамическому пределу. На значительные трудности наталкивается и экспериментальное изучение свойств малых частиц: часто не удается непо-

средственно контролировать число взаимодействующих элементов; форму частицы; наличие примесей и дефектов; появление окисной оболочки; эффекты, обусловленные межчастичными взаимодействиями. Этих недостатков лишены методы численного эксперимента. Разработка моделей малых магнитных структур и алгоритмов их исследования является важной задачей современной вычислительной физики. Результаты, полученные на основе методов вычислительной физики, не только не уступают по точности другим теоретическим методам, но зачастую и превосходят их [1, 2].

До сих пор, как правило, основными объектами исследования являлись системы, которые могут быть описаны простыми классическими моделями первого приближения, такими как модель Изинга, модель Гейзенберга, XY-модель и др. В реальных же материалах помимо обменного взаимодействия присутствуют различные факторы, не учитываемые классическими моделями первого приближения. Одноосная анизотропия, диполь-дипольное взаимодействие, наличие свободной поверхности, учет взаимодействия частиц второй координационной сферы и другие факторы могут оказывать значительное влияние на характер статического и динамического кри-

*E-mail: vadim.mut@mail.ru

тического поведения как макроскопических, так и малоразмерных магнетиков [3–5].

2. МОДЕЛЬ И МЕТОД

В данной работе мы исследовали статическое критическое поведение моделей малых частиц реального двухподрешеточного антиферромагнетика MnF_2 с учетом взаимодействия вторых ближайших соседей. При построении модели учитывались основные магнитные и кристаллографические особенности реального материала [6, 7]. В MnF_2 атомы марганца образуют объемноцентрированную тетрагональную структуру с постоянными решетки $a = 4.87 \text{ \AA}$ и $c = 3.31 \text{ \AA}$. Основными обменными взаимодействиями в нем являются антиферромагнитное вдоль направления $[111]$ с константой $J_1/k_B = -1.76 \text{ К}$ и слабое ферромагнитное вдоль направления $[001]$ с константой $J_2/k_B = 0.3 \pm 0.1 \text{ К}$. Обменное взаимодействие вдоль направлений $[100]$ и $[010]$ близко к нулю. Таким образом, ферромагнитное взаимодействие между ближайшими спинами вдоль оси c оказывается намного меньше, чем антиферромагнитное взаимодействие центрального спина со спинами в углах решетки. Величина спина равна $S = 5/2$ [8], что, по-видимому, позволяет использовать для описания этой системы квазиклассическую ($S = \infty$) модель Гейзенберга. Схематически структура решетки MnF_2 приведена на рис. 1.

В реальных образцах MnF_2 имеется сильная одноосная анизотропия, направленная вдоль оси c . В качестве постоянной анизотропии мы использовали величину $D_A = 0.0591|J_1|$ [9], соответствующую ма-

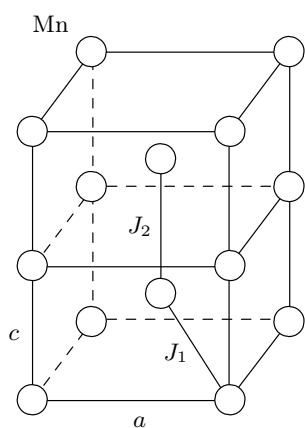


Рис. 1. Схематическое изображение магнитных ионов Mn в решетке MnF_2

Таблица 1. Параметры исследованных частиц

L	N	N_S	$P_S, \%$
10	1729	650	37.59
14	4941	1354	27.40
18	10745	2314	21.54
22	19909	3530	17.73

крообразцам MnF_2 . Как модифицируется эта величина для малых частиц, найти в литературе не удалось. Согласно экспериментальным данным, в образцах MnF_2 наблюдается фазовый переход из антиферромагнитного в парамагнитное состояние при температуре Нееля $T_N = 67.34 \text{ К}$ [7, 10].

Таким образом, с учетом особенностей реального материала гамильтониан модели MnF_2 может быть представлен в следующем виде:

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

где первая сумма учитывает обменное взаимодействие ионов Mn с ионами, расположенными в углах элементарной ячейки ($J_1 < 0$), вторая сумма учитывает обменное взаимодействие между соседями вдоль оси c ($J_2 > 0$, $|J_2/J_1| = 0.170$), третья сумма учитывает одноосную анизотропию.

В процессе исследований нами моделировались частицы тетрагональной формы, содержащие $L \times L \times L$ элементарных ячеек в каждом кристаллографическом направлении. Частицы ориентировались в пространстве таким образом, чтобы ось координат z совпадала с кристаллографической осью c , а ось x — с кристаллографической осью a . Для оценки влияния размеров частиц на характер их критического поведения рассматривались системы с открытыми границами. Вычисления проводились методом Монте-Карло на основе стандартного алгоритма Метрополиса [1, 2, 11].

Параметры исследованных частиц приведены в табл. 1. Для всех линейных размеров L в таблице указаны общее число спинов N , число поверхностных спинов N_S и доля поверхностных спинов P_S . В качестве поверхностных принимались спины, не имеющие полного набора ближайших соседей первого или второго порядка.

В ходе моделирования для приведения спиновой системы в состояние термодинамического равновесия отбрасывался начальный неравновесный участок марковской цепи, заведомо больший, чем время релаксации исследуемой частицы. Длина неравновесного участка выбиралась в зависимости от температуры и для всех линейных размеров составляла 100000 шагов Монте-Карло на спин вдали от критической области и 200000 шагов в области фазового перехода. В равновесном состоянии вычислялись средние по ансамблю значения термодинамических величин. Длина равновесного участка для всех линейных размеров составляла от 500000 до 1000000 шагов Монте-Карло на спин в зависимости от температурной области. Кроме того, для улучшения статистики при каждой температуре для всех линейных размеров проводилось до пяти моделирований при различных начальных спиновых конфигурациях, результаты которых потом усреднялись между собой.

В качестве параметра порядка модели антиферромагнетика MnF_2 нами использовался модуль вектора антиферромагнетизма M , который вычислялся как разница намагниченностей двух его подрешеток:

$$M = ((M_{1x} - M_{2x})^2 + (M_{1y} - M_{2y})^2 + (M_{1z} - M_{2z})^2)^{1/2}, \quad (2)$$

где M_{nk} — k -я проекция намагниченности n -й подрешетки. Для наблюдения за температурным ходом поведения теплоемкости и восприимчивости нами использовались флуктуационные соотношения [12]

$$C = (NK^2) (\langle U^2 \rangle - \langle U \rangle^2), \quad (3)$$

$$\chi = (NK) (\langle M^2 \rangle - \langle M \rangle^2), \quad (4)$$

где $K = |J_1|/k_B T$, N — число частиц, U — внутренняя энергия.

Температурные зависимости термодинамических параметров вычислялись с шагом по температуре $\Delta T = 0.1 k_B T / |J_1|$ вдали от области фазового перехода и с шагом $\Delta T = 0.02 k_B T / |J_1|$ вблизи критической точки.

При переводе температуры из безразмерных единиц $k_B T / |J_1|$ в градусы Кельвина необходимо учитывать, что в процессе моделирования нами использовался классический гамильтониан модели Гейзенберга (1). Поведение квантовой модели Гейзенберга с большим значением спина ($S \geq 2$) близко к поведению классической модели Гейзенберга в том случае,

если в качестве спинов использовать векторы, равные по модулю $\sqrt{S(S+1)}$ [13]. При этом величина обменных взаимодействий не изменяется. Поскольку в формуле (1) мы использовали векторы единичной длины, для пересчета температуры необходима перенормировка обменного взаимодействия на величину $S(S+1)$. Таким образом, с учетом формы записи гамильтониана (1) температура в градусах Кельвина T для MnF_2 вычислялась нами по формуле

$$T = t \cdot 2S(S+1)|J_1|/k_B, \quad (5)$$

где t — температура в условных единицах обменного интеграла, использовавшаяся нами в процессе моделирования. На всех представленных ниже графиках для наглядности мы приводим температуру как в безразмерных единицах $k_B T / |J_1|$, так и в градусах Кельвина.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 2 представлены полученные нами температурные зависимости параметра порядка для частиц с различными линейными размерами. Вертикальной пунктирной линией на графике отмечена температура фазового перехода $T_N = 67.34$ К реальных образцов MnF_2 . Как видно на рисунке, при близкой к нулю температуре размерные эффекты отсутствуют. С ростом температуры появляется различие в кривых, полученных для различных линейных размеров. Такое поведение параметра порядка в

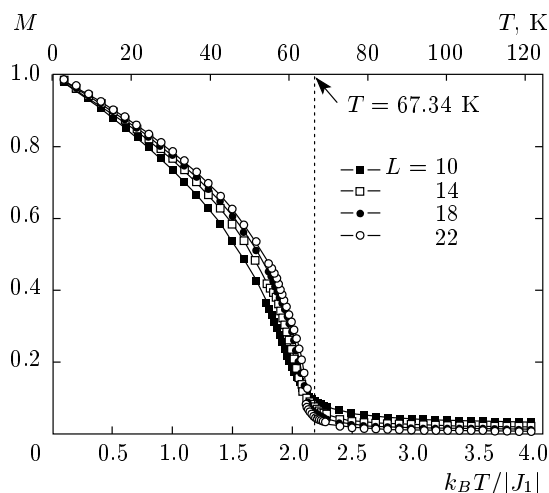


Рис. 2. Зависимость модуля вектора антиферромагнетизма M (параметра порядка) от температуры для частиц с различными линейными размерами L

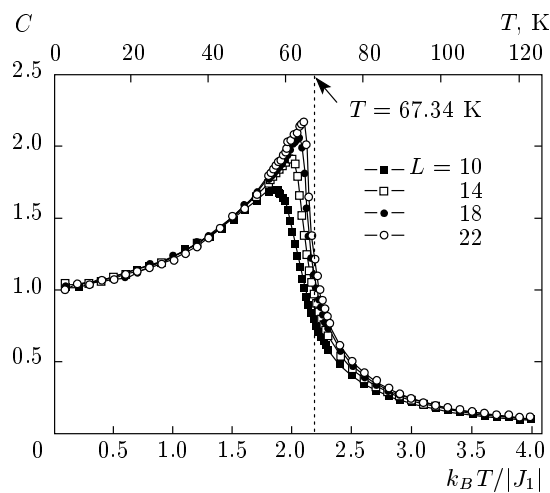


Рис. 3. Зависимость теплоемкости C от температуры для частиц с различными линейными размерами L

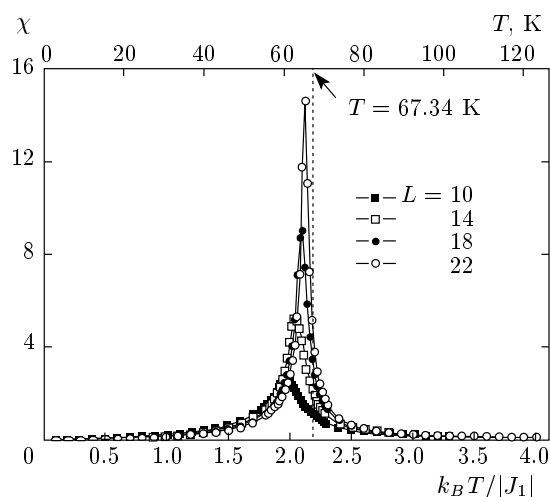


Рис. 4. Зависимость восприимчивости χ от температуры для частиц с различными линейными размерами L

низкотемпературной области присуще моделям малых магнитных частиц с открытыми границами [14]. В высокотемпературной области размерные эффекты проявляются в виде традиционных для метода Монте-Карло «хвостов». С увеличением линейных размеров величина «хвостов» уменьшается и параметр порядка стремится к нулю.

Зависимость теплоемкости от температуры для частиц с различными линейными размерами приведена на рис. 3. Как видно на рисунке, вблизи критической области максимумы теплоемкости имеют сглаженные пики вместо характерных особенностей. Сглаживание уменьшается с ростом линейных размеров частицы, а абсолютная величина максимумов соответственно увеличивается. Такая особенность поведения некоторых производных свободной энергии характерна для малых частиц и обусловлена тем, что вблизи критической области радиус корреляции становится равным линейным размерам частицы [11].

По температуре максимумы теплоемкости смещены относительно температуры фазового перехода T_N реального материала (бесконечной системы) в сторону низких температур. С уменьшением линейных размеров смещение увеличивается. Смещение критической температуры связано с тем, что в малых частицах велика доля поверхностных спинов, не обладающих полным набором ближайших соседей. В результате разупорядочение возникает при более низких температурах [11].

На рис. 4 представлена зависимость восприимчивости от температуры для частиц с различными

линейными размерами. Здесь также наблюдаются сглаживание пиков вблизи T_N и их смещение по температуре. Отметим, что для одинаковых линейных размеров температуры, на которые приходятся максимумы теплоемкости и восприимчивости, не совпадают между собой. Максимумы восприимчивости приходятся на более высокие значения температур. Такое несовпадение характерно как для моделей макрообразцов, так и для моделей малых частиц [14]. Полученные нами температурные значения максимумов теплоемкости и восприимчивости для всех линейных размеров приведены в табл. 2. Отметим, что с ростом размеров частиц разница по температуре в максимумах теплоемкости и восприимчивости уменьшается. Несовпадение максимумов делает неоднозначным вопрос выбора эффективной температуры фазового перехода в моделях малых частиц. Для получения строгого критерия нами проводилась следующая процедура.

В процессе моделирования на каждом шаге Монте-Карло на спин вычислялся угол θ между направлением вектора намагниченности каждой подрешетки и осью z . Затем полученные данные усреднялись по всей длине марковской цепи. На рис. 5 представлена полученная таким образом температурная зависимость угла θ для частиц с линейными размерами $L = 14$ и $L = 22$. Отметим, что нумерация решеток условная. В качестве первой мы выбирали подрешетку с меньшим значением угла θ , а в качестве второй — с большим. Как видно на графике, при низких температурах магнитные моменты подрешеток

Таблица 2. Температурные значения максимумов теплоемкости T_{max}^C и восприимчивости T_{max}^X для различных линейных размеров L

L	$T_{max}^C,$ $k_B T / J_1 $	$T_{max}^X,$ $k_B T / J_1 $	$T_{max}^C,$ К	$T_{max}^X,$ К
10	1.84(2)	1.96(2)	56.7(6)	60.4(6)
14	1.98(2)	2.04(2)	61.0(6)	62.8(6)
18	2.06(2)	2.10(2)	63.4(6)	64.7(6)
22	2.10(2)	2.12(2)	64.7(6)	65.3(6)

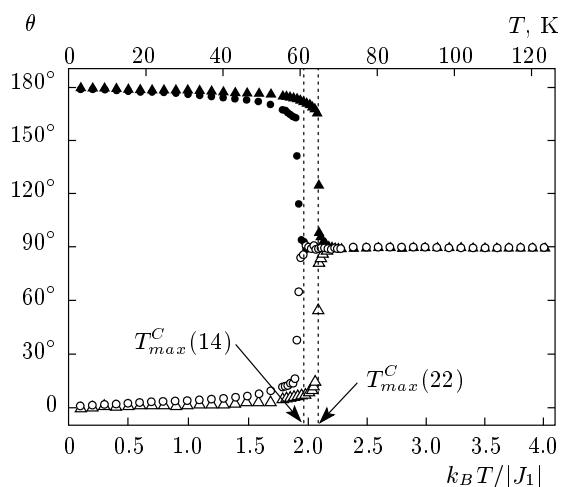


Рис. 5. Зависимость от температуры угла θ между направлением векторов намагниченности подрешеток и осью z для частиц с линейными размерами $L = 14$ (● — подрешетка 1, ○ — подрешетка 2), $L = 22$ (▲ — подрешетка 1, △ — подрешетка 2)

ориентированы вдоль оси z во взаимно противоположных направлениях. При некоторой температуре упорядочение полностью исчезает и частица переходит из антиферромагнитного в парамагнитное состояние. Как следует из табл. 2, температура упорядочения приходится на максимум температурной зависимости теплоемкости для данной частицы. Таким образом, эффективную температуру фазового перехода в моделях малых частиц, по-видимому, желательно определять по положению максимума температурной зависимости теплоемкости. Также на рисунке видно, что разупорядочение происходит в достаточно узком температурном интервале, который уменьшается с ростом линейных размеров системы.

Согласно теории конечно-размерного скейлинга [1, 2], эффективная температура фазового перехо-

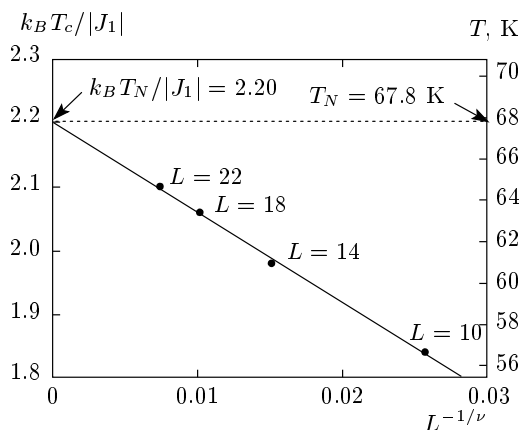


Рис. 6. Зависимость критической температуры от линейных размеров частиц

да $T_N(L)$ частицы с конечными линейными размерами L отличается от температуры фазового перехода T_N бесконечной системы на величину [1]

$$T_N(L) = T_N - \lambda L^{-1/\nu}, \tag{6}$$

где λ — некоторая константа, ν — статический критический индекс радиуса корреляции. Полученная нами зависимость температуры фазового перехода $T_N(L)$ от линейных размеров L представлена на рис. 6. В качестве $T_N(L)$ использовалась температура, на которую приходится максимум теплоемкости.

Линейная аппроксимация данной зависимости по формуле (6) позволяет рассчитать критическую температуру бесконечной системы по пересечению интерполяционной прямой с температурной осью в точке $L^{-1/\nu} \rightarrow 0$. Аппроксимация проводилась методом наименьших квадратов и показана на рисунке сплошной линией. Исследование модели макрообразцов MnF_2 с учетом взаимодействия первых ближайших соседей показало, что наличие сильной одноосной анизотропии приводит к изинговскому классу универсальности статического критического поведения данной модели [15]. Поэтому при вычислениях по формуле (6) в качестве величины статического критического индекса радиуса корреляции мы использовали значение $\nu = 0.6298(8)$, характерное для классической трехмерной модели Изинга [1]. В результате для бесконечной системы нами было получено значение критической температуры $T_N = 2.20(2)k_B T / |J_1|$. Отметим, что в градусах Кельвина данное значение соответствует величине $T_N = 67.8(6)$ К, что близко к температуре фазового перехода реальных образцов MnF_2 .

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные нами исследования показывают эффективность применения методов вычислительной физики для изучения статического критического поведения моделей малых частиц реальных магнитных материалов. Метод Монте-Карло позволяет исследовать влияние размерных эффектов на теплофизические свойства моделей малых частиц. Поскольку максимумы температурных зависимостей теплоемкости и магнитной восприимчивости для одинаковых линейных размеров приходятся на разные значения температур, этих данных недостаточно для однозначного определения эффективной температуры фазового перехода моделей малых магнитных частиц. Для более строгого определения температуры упорядочения необходимо дополнительное исследование пространственной ориентации вектора намагниченности подрешетки (подрешеток) исследуемых моделей.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (соглашение 14.В37.21.1092) и РФФИ (гранты №№ 13-02-00220_А_2013, 12-02-96504-р_юг_а).

ЛИТЕРАТУРА

1. D. P. Landau, *Physica A* **205**, 41 (1994).
2. И. К. Камилов, А. К. Муртазаев, Х. К. Алиев, УФН **169**, 773 (1999).
3. А. К. Murtazaev, *Low Temp. Phys.* **25**(5), 344 (1999).
4. И. К. Камилов, А. К. Муртазаев, М. А. Магомедов, ЖЭТФ **120**, 1535 (2001).
5. А. К. Муртазаев, В. А. Мутайламов, ЖЭТФ **128**, 344 (2005).
6. L. D. de Jongh and A. R. Miedema, *Adv. Phys.* **23**, 1 (1973).
7. P. Heller, *Phys. Rev.* **146**, 403 (1966).
8. N. Akutsu and H. Ikeda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **50**, 2865 (1981).
9. D. P. Landau, A. Bunker, and K. Chen, *J. Magn. Magn. Mater.* **177–181**, 161 (1998).
10. Y. Shapira and S. Foner, *Phys. Rev. B* **1**, 3083 (1970).
11. К. Биндер, *Методы Монте-Карло в статистической физике*, Мир, Москва (1982).
12. P. Peczak, A. M. Ferrenberg, and D. P. Landau, *Phys. Rev. B* **43**, 6087 (1991).
13. Sh.-H. Tsai, A. Bunker, and D. P. Landau, *Phys. Rev. B* **61**, 333 (2000).
14. D. P. Landau, *Phys. Rev. B* **14**, 255 (1976).
15. М. А. Магомедов, А. К. Муртазаев, *Изв. ВУЗов: Физика* **48**, 53 (2005).