https://doi.org/10.22226/2410-3535-2020-3-334-339

Percolation effects in quasi-one-dimensional Ising ragged magnet

D. V. Spirin^{†,1,2}, V. N. Udodov¹

[†]dvspirin@mail.ru

¹Katanov Khakas State University, 92 Lenin St., Abakan, 655017, Russia ²Khakas Technical Institute — affiliate of Siberian Federal University, 27 Schetinkin St., Abakan, 655017, Russia

In recent decades, one-dimensional (quasi-one-dimensional) Ising magnetic compounds have been synthesized, on which new promising materials are based. Here, percolation effects are considered in the model of a one-dimensional Ising magnet of finite nanometer size with boundary conditions "dangling ends". The model takes into account the interaction with an external magnetic field, nearest-site interaction of nodes, interaction of second and third neighbors, as well as four-particle interactions. To model the phase transition, the Metropolis algorithm was used. Two options for the localization of a nonmagnetic impurity are considered: with mobile impurities and with fixed impurities (frozen impurities). For mobile impurities, the Metropolis algorithm contains the possibility of moving non-magnetic nodes along the chain. In the second variant, when the initial configurations are formed, nonmagnetic impurities in the magnet take random constant equiprobable positions. It is shown that the presence of non-magnetic nodes leads to a weakening of the correlation inside the chain and the magnet breaks up into several parts unconnected by magnetic interaction. The fraction of nonmagnetic atoms, in which the magnet is divided into two non-correlating parts, is an analogue to the percolation threshold in the percolation site problem. The percolation radius corresponds to the farthest nonzero interaction. The paper shows the existence of a relationship between the percolation threshold and the dependences of the relaxation time of the ferromagnet — antiferromagnet phase transition and the dynamic critical exponent Z on the fraction of nonmagnetic impurities in the model of a one-dimensional Ising magnet with fixed (frozen) nonmagnetic impurities. In the case of mobile nonmagnetic impurities, the absence of a clear connection between the percolation threshold and the dependences of the relaxation time and the dynamic critical exponent is shown.

Keywords: magnetic phase transitions, critical exponents, ferromagnets, antiferromagnets, one-dimensional nanomagnets, percolation.

УДК: 537.62, 537.9

Перколяционные эффекты в квазиодномерном изинговском магнетике с оборванными концами

Спирин Д. В.^{†,1,2}, Удодов В. Н.¹

¹Хакасский государственный университет им. Н. Ф. Катанова, ул. Ленина, 92, Абакан, 655017, Россия ²Хакасский технический институт — филиал ФГАОУ ВО «Сибирский федеральный университет», ул. Щетинкина, 27, Абакан, 655017, Россия

В последние десятилетия синтезированы одномерные (квазиодномерные) изинговские магнитные соединения, на которых основаны новые перспективные материалы. В работе рассмотрены перколяционные эффекты в модели одномерного изинговского магнетика конечного нанометрового размера с граничными условиями «оборванные концы». В модели учтено взаимодействие с внешним магнитным полем, ближнее взаимодействие узлов, взаимодействие вторых и третьих соседей, а также четырехчастичное взаимодействие. Для моделирования фазового перехода использовался алгоритм Метрополиса. Рассмотрены два варианта локализации немагнитной примеси: с подвижными примесями и с фиксированными примесями (замороженные примеси). Для подвижных примесей в алгоритм Метрополиса заложена возможность перемещения немагнитных узлов вдоль цепочки. Во втором варианте при формировании начальных конфигураций немагнитные примеси принимают в магнетике случайные постоянные равновероятные позиции. Показано, что наличие немагнитных узлов приводит к ослаблению корреляции внутри цепочки и магнетик разбивается на несколько несвязанных магнитным взаимодействием частей. Доля немагнитных атомов, при которой магнетик разбивается на две некоррелирующие части, является аналогом порога протекания в перколяционной задаче узлов. Радиус протекания соответствует самому дальнему ненулевому взаимодействию. В работе показано наличие связи между порогом протекания и зависимостями времени релаксации фазового перехода ферромагнетик-антиферромагнетик и динамического критического индекса Z от доли немагнитных примесей в модели одномерного изинговского магнетика с фиксированными (замороженными) немагнитными примесями. В случае подвижных немагнитных примесей показано отсутствие четкой связи между порогом протекания и зависимостями времени релаксации и динамического критического индекса.

Ключевые слова: фазовые магнитные переходы, критические индексы, ферромагнетики, антиферромагнетики, одномерные наномагнетики, перколяция.

1. Введение

Исследование низкоразмерного магнетизма — важная задача материаловедения и физики твердого тела. Экспериментальный интерес к этой проблеме связан с необычными магнитными свойствами органических соединений, ферромагнитных пленок, мультислоев и поверхностей, и с другими исследованиями [1-8]. Особый класс низкоразмерных магнитных систем с локальными моментами — квазиодномерные соединения, содержащие цепочки магнитных атомов со слабым межцепочечным обменом, в некоторых случаях такие системы описываются моделью Изинга [8]. Экспериментальные и теоретические исследования квазиодномерных магнетиков представляют большие трудности, что делает необходимым на первом этапе компьютерное моделирование процессов в таких системах [3,9-11].

Интерес к малым системам вызван тем, что наноразмерные системы обладают уникальной структурой и свойствами, многие из которых имеют фундаментальный и практический интерес, а именно, открываются перспективы улучшения существующих и создания принципиально новых конструкционных и функциональных материалов, в том числе для квантовых компьютеров. В наноструктурных материалах часто изменяются фундаментальные, обычно структурнонечувствительные характеристики, такие как упругие модули, температуры Кюри и Дебая, намагниченность насыщения, а также наблюдаются особенности фазовых превращений [2-9]. Магнитные свойства наноразмерных материалов не описываются моделями первого приближения (традиционная модель Изинга со взаимодействием ближайших соседей, модель Гейзенберга и т.д.). Поэтому в исследованиях наноструктур используются модели, учитывающие усложняющие факторы, присущие реальным системам [3,9,11]. Строгое исследование таких моделей на основе микроскопических гамильтонианов методами современной физики — задача чрезвычайно сложная, особенно это касается кинетических свойств [8-10]. К тому же, реальные магнитные материалы содержат немагнитные примеси. Все выше перечисленное приводит к использованию методов численного моделирования для исследования, в частности, низкоразмерных магнитных систем. В настоящей работе изучено влияние немагнитных примесей на критическую динамику квазиодномерного изинговского наномагнетика.

2. Модифицированная модель одномерного изинговского наномагнетика с немагнитными примесями

В модифицированной модели одномерного изинговского наномагнетика с граничными условиями «оборванные концы» учитываются ближнее взаимодействие (j_1) , взаимодействие вторых (j_2) и третьих соседей (j_3) , а также четырехчастичное взаимодействие (j_4) . Таким образом, учитываются все возможные взаимодействия в пределах четырех соседних узлов и гамильтониан магнетика имеет вид

$$\varepsilon = -h \sum_{i=1}^{N} s_i - j_1 \sum_{i=1}^{N-1} s_i s_{i+1} - j_2 \sum_{i=1}^{N-2} s_i s_{i+2} - j_3 \sum_{i=1}^{N-3} s_i s_{i+3} - j_4 \sum_{i=1}^{N-3} s_i s_{i+1} s_{i+2} s_{i+3},$$
(1)

где N — количество узлов в одномерном магнетике (размер системы); *i* — номер узла; s_i — проекция безразмерного вектора спинового магнитного момента *i*-го узла на ось *z*, вдоль которой направлена напряженность внешнего магнитного поля; *h* — энергия взаимодействия узла с внешним магнитным полем. Граничные условия «оборванные (свободные) концы» моделируют реальную одномерную цепочку, например, на поверхности кристалла [8].

Удобно выразить гамильтониан через магнитную энергию взаимодействия ближайших соседей (обменный интеграл [9, 11]) *E*=ε/|*j*_i|, тогда

$$E = -H \sum_{i=1}^{N} s_i \pm \sum_{i=1}^{N-1} s_i s_{i+1} - J_2 \sum_{i=1}^{N-2} s_i s_{i+2} - J_3 \sum_{i=1}^{N-3} s_i s_{i+3} - J_4 \sum_{i=1}^{N-3} s_i s_{i+1} s_{i+2} s_{i+3}.$$
(2)

Если энергия взаимодействия ближайших соседей положительна, то перед вторым слагаемым в гамильтониане ставится знак «-», если отрицательна, то знак «+». В настоящей работе конечное состояние системы соответствует антиферромагнитной фазе $(j_1<0)$, а начальная ферромагнитная фаза достигается включением большого внешнего магнитного поля (|H|>2). Для моделирования кинетики фазового перехода ферромагнетик-антиферромагнетик использовался алгоритм Метрополиса, который учитывает влияние температуры T на процесс. Подобные превращения наблюдаются экспериментально [11]. Удобно

использовать безразмерную приведенную температуру: $\Theta = kT/|j_1|$.

Немагнитные примеси занимают место в узлах цепочки и размер системы складывается из количества немагнитных (N) и магнитных (N) узлов. В модели магнетика с переменной локализацией немагнитной примеси в алгоритм Метрополиса заложена возможность перемещения немагнитных атомов (узлов) вдоль цепочки. Если по ходу алгоритма случайно выбранный *i*-й узел (атом) является немагнитным, то с вероятностью 0.5 он делает попытку переместиться влево (i-1) или вправо (*i*+1) по цепочке. Удачна попытка или нет, определяется алгоритмом Метрополиса [3,9]. Вероятность удачного скачка при уменьшении температуры быстро стремится к нулю. При удачном прыжке немагнитной примеси магнитный узел, место которого заняла примесь, перемещается на ее место. Крайние узлы, если они оказались немагнитными, могут перемещаться только внутрь магнетика.

В модели с фиксированным положением немагнитной примеси при формировании начальных конфигураций для параллельных реализаций алгоритма Метрополиса немагнитные примеси принимают в наномагнетике случайные равновероятные позиции. После этого в течение всего процесса положение примесей не меняется, что соответствует низким температурам («замороженные» примеси). Таким образом, в магнетике изменяются только направления спинов магнитных узлов в соответствии с алгоритмом Метрополиса.

Обменные константы $(j_1 < 0, J_2, J_3, J_4)$ и внешнее поле выбирались исходя из диаграмм основных состояний и из условия возможности в модели превращения ферромагнетик-антиферромагнетик, которое наблюдается экспериментально [8,11].

3. Перколяционные эффекты в модели одномерного изинговского наномагнетика с фиксированными примесями

Энергия магнитной конфигурации зависит от расположения немагнитных узлов, следовательно, в модели с фиксированными немагнитными примесями, даже начальные ферромагнитные конфигурации с большой долей вероятности не имеют одинаковой энергии. Это приводит к резкому росту вариантов диаграмм основных состояний (без примесей количество вариантов равно единице, с фиксированными примесями — $N!/(N_a!\cdot N_m!)$. В связи этим были построены диаграммы основных состояний для наиболее вероятных расположений примесей [12]. Их анализ показал, что фазовый переход ферромагнетик-антиферромагнетик возможен для любого размера системы и количества немагнитных примесей до $N_a = N - 2$ (в крайнем случае, два узла остаются магнитными).

Учет только ближайшего взаимодействия j_1 соответствует единичному радиусу протекания R=1. При таком радиусе один немагнитный узел разбивает магнетик на две не коррелирующие части, а в теории перколяции прекращается протекание. Тогда порог протекания N_{ac} , выраженный через количество немагнитных узлов, равен единице (N_{ac} =1). На Рис. 1 представлен график зависимости времени релаксации, выраженного в шагах Монте-Карло, от количества немагнитных узлов для различных размеров магнетика и приведенной температуры 0.5. При увеличении числа немагнитных узлов время релаксации убывает. На пороге протекания (N_{ac} =1) имеется небольшой излом кривой времени релаксации т. При увеличении температуры излом становится менее заметным. Такое поведение времени релаксации отражается на динамическом критическом индексе Z [10]

$$\tau \propto N^Z. \tag{3}$$

В его зависимости от количества немагнитных узлов (Рис. 2) также имеется излом кривой на пороге протекания. После излома на пороге индекс Z увеличивается экспоненциально. Этот результат получен впервые и говорит о том, что при большой концентрации немагнитных примесей зависимость времени релаксации от размера одномерного наномагнетика становится аномально сильной по сравнению с обычными макросистемами [10]. Индекс Z рассчитывался для двух различных размеров цепочки, поэтому на врезке Рис. 2 среднее количество узлов является дробным.

Ненулевая энергия взаимодействия вторых соседей J_2 соответствует радиусу протекания, равному двум. Значения порога, соответствующего такому радиусу одномерного протекания, представлены в Табл. 1.

На Рис. 3 значениям порога протекания соответствуют вертикальные линии (порог зависит от размера системы). Из графика следует, что перед порогом протекания время релаксации медленно растет, а после порога быстро убывает, причем близко к порогу наблюдается максимум кривой времени релаксации. Так как взаимодействие ближайших соседей не нулевое,



Рис. 1. Зависимость времени релаксации τ от количества немагнитных примесей N_a . $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_2 = J_3 = J_4 = 0$. **Fig. 1.** Dependence of the relaxation time τ on the quantity of non-magnetic additions N_a . $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_2 = J_3 = J_4 = 0$.

то имеется излом (минимум) времени релаксации и на пороге протекания для *R*=1.

Динамический критический индекс Z при учете взаимодействия вторых соседей до порога протекания растет слабо. После второго порога протекания Z растет экспоненциально и достигает аномальных значений, больших 10. Следовательно, динамика фазового магнитного перехода до порога протекания и после него разная — относительно слабая зависимость времени релаксации от размеров системы до порога и сильная после. Кстати, при отсутствии немагнитных примесей индекс Z не является аномально большим (см. Рис. 2) по сравнению с обычными значениями [10].

Учет взаимодействия третьих соседей и многочастичного взаимодействия соответствует радиусу протекания, равному трем R=3. Соответствующие значения порога представлены в Табл. 2, а также отмечены на Рис. 4 вертикальными линиями.

Как в случае ненулевого взаимодействия третьих соседей (Рис. 4), так и в случае ненулевого многочастичного взаимодействия, влияние немагнитных примесей на зависимость времени релаксации аналогично учету взаимодействия вторых соседей — имеется излом кривой времени релаксации и на пороге протекания для R=1 (так как $j_1 < 0$, $|j_1| > J_3$ и $|j_1| > J_{1-4}$). Далее при увеличении размеров магнетика время релаксации медленно растёт и после порога протекания для R=3 быстро убывает. Отметим, что для четырехчастичного взаимодействия рост времени релаксации до порога выражен слабее. Исследована зависимость динамического критического индекса Z от числа немагнитных атомов для ненулевых *J*₃ и *J*₁₋₄. До порога протекания индекс *Z* практически не изменяется при изменении количества примесей, что отличается от случая с ненулевым Ј₂. После порога индекс экспоненциально растет. Также на графике есть небольшой излом при N_a =1, что объясняется ненулевым взаимодействием ближайших соседей. Таким образом, и в случаях с ненулевыми взаимодействиями J₃ и J₁₋₄ наблюдается разная динамика фазового магнитного перехода до и после порога протекания.

Показано, что при температурах выше $\Theta = 0.4$ среднее время движения примеси по всей цепочке больше времени релаксации. Это различие увеличивается при росте температуры, то есть, процесс релаксации в одномерном изинговском магнетике в значительно большей степени связан с переворотами спинов, чем с движением немагнитных примесных атомов. Заметим, что при увеличении температуры все характерные времена уменьшаются, но с разной скоростью.

Табл. 1. Порог одномерного протекания для радиуса, равного двум.

 Table 1. Threshold of one-dimensional percolation for a radius of two.

N	N _{ac}	N	N _{ac}
4	2.500	8	3.179
5	2.700	9	3.321
6	2.867	10	3.457
7	3.029	11	3.587

Табл. 2. Порог для радиуса протекания, равного трем. **Table 2.** Threshold of percolation for a radius of three.

Ν	N_{ac}	Ν	N_{ac}
4	3.500	8	4.857
5	3.900	9	5.155
6	4.200	10	5.448
7	4.543	11	5.729



Рис. 2. Зависимость динамического критического индекса Z от количества немагнитных примесей N_a . $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_2 = J_3 = J_4 = 0$.

Fig. 2. Dependence of the dynamic critical exponent *Z* on the quantity of non-magnetic impurities N_a . $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_2 = J_3 = J_4 = 0$.



Рис. 3. Зависимость времени релаксации τ от количества немагнитных примесей N_a . $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_2 = 0.5$, $J_3 = J_4 = 0$. **Fig. 3.** Dependence of the relaxation time τ on the quantity of non-magnetic additions N_a . $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_2 = 0.5$, $J_3 = J_4 = 0$.



Рис. 4. Зависимость времени релаксации τ от количества немагнитных примесей N_a . $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_3 = 0.3$, $J_2 = J_4 = 0$. **Fig. 4.** Dependence of the relaxation time τ on the quantity of non-magnetic additions N_a . $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_3 = 0.3$, $J_2 = J_4 = 0$.

4. Перколяционные эффекты в модели одномерного изинговского наномагнетика с подвижными примесями

Этот случай соответствует более высоким температурам, когда немагнитные примесные атомы могут перемещаться (диффундировать).

Для определения возможности перехода ферромагнетик-антиферромагнетик в модели наномагнетика с примесями, а также для определения начальных конфигураций в алгоритме Метрополиса были построены диаграммы основных состояний [12]. Из них следует, что такой переход возможен, при любом числе немагнитных узлов до $N_a \leq N-2$. Наличие одного немагнитного узла увеличивает количество областей (фаз) на диаграммах, но дальнейшее увеличение числа немагнитных узлов приводит к уменьшению количества различных фаз.

При учёте только ближайшего взаимодействия *j*, для общего количества узлов больше семи и приведённой температуры больше единицы на графике зависимости времени релаксации от количества немагнитных примесей вблизи порога протекания имеется минимум. Для количества узлов меньше семи имеющийся на кривой максимум смещается влево и подавляет минимум. Зависимость динамического критического индекса Z от количества примесей вблизи порога протекания также имеет минимум (Рис. 5). Причем значения индекса близки к нулю (Рис. 5) (это аномальное поведение по сравнению с макросистемами [10]), то есть зависимость времени релаксации от размеров одномерной системы является очень слабой, в отличие от замороженных примесей (см. выше).



Рис. 5. Зависимость динамического критического индекса Z от количества немагнитных примесей N_a в модели с подвижными примесями. $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_2 = J_3 = J_4 = 0$.

Fig. 5. Dependence of the dynamic critical exponent *Z* on the quantity of non-magnetic impurities N_a in model with mobile impurities. $\Theta = 0.5$, H = 0, $j_1 < 0$, $J_2 = J_3 = J_4 = 0$.

Учет взаимодействия вторых соседей ($J_2 \ge 0.5$) приводит к отсутствию минимумов в зависимостях времени релаксации от количества примесей. Кривые времени релаксации имеют максимум вблизи порога протекания, но точного соответствия между положением максимума и порогом не наблюдается. Динамический критический индекс Z вблизи порога имеет минимум, однако при подвижных примесях соответствие между положением минимума и порогом протекания еще слабее. Подобные слабые перколяционные эффекты наблюдаются при учете энергии взаимодействия третьих соседей и многочастичного взаимодействия.

5. Заключение

1. Разработана модель кинетики одномерного изинговского наномагнетика с граничными условиями «оборванные концы» при учете немагнитных примесей и сложного реалистичного многочастичного взаимодействия.

2. Исследование диаграмм основных состояний одномерного изинговского магнетика с учетом немагнитных примесей показало, что наблюдаемый экспериментально [11] переход ферромагнетик-антиферромагнетик возможен при любом числе немагнитных примесей до $N_a \leq N-2$, причём как для модели с фиксированными примесями, так и для модели с подвижными примесями.

3. При фиксированном положении примесных атомов, что соответствует низким температурам, в одномерном изинговском наномагнетике проявляются перколяционные эффекты. При всех рассмотренных взаимодействиях время релаксации до порога протекания, соответствующего наибольшему радиусу протекания, растет, а после порога убывает. Динамический критический индекс Z до порога слабо зависит от количества немагнитных атомов, а после порога экспоненциально растет, что является интересным результатом. Это свидетельствует о том, что при большой (более 20%) концентрации немагнитных примесей зависимость времени релаксации от размера одномерного наномагнетика становится аномально сильной: индекс Z принимает значения 10 и более. В классической теории Ландау-Халатникова Z=2 для трехмерных систем [7], экспериментальные значения для макросистем не более, чем $Z \approx 2.6$ [10].

4. В модели одномерного изинговского наномагнетика с перемещающейся немагнитной примесью (соответствует достаточно высоким температурам) перколяционные эффекты при значительном влиянии примесей на время релаксации и динамический критический индекс Z проявляются слабо и неоднозначно, то есть отсутствует корреляция между свойствами и порогом протекания.

Благодарности / Acknowledgements. Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ и Республики Хакасия в рамках научного проекта № 18-41-190003. / The study was carried out with the financial support of the Russian Foundation for Basic Research and the Republic of Khakassia within the framework of the scientific project No. 18-41-190003.

Литература/References

 N. I. Noskova, R. R. Mulykov. Submicrocrystalline and nanocrystalline metals and alloys. Yekaterinburg, Ural Branch of RAS (2003) 279 p. (in Russian) [Н. И. Носкова, P. P. Мулюков. Субмикрокристаллические и нанокристаллические металлы и сплавы. Екатеринбург, УрО РАН (2003) 313 с.]

- A. E. Ermakov, A. A. Mysik, A. V. Korolev. The problems of nanocrystalline materials. Yekaterinburg, Ural Branch of RAS (2002) pp. 380 – 390. (in Russian) [А. Е. Ермаков, А. А. Мысик, А. В. Королев. Проблемы нанокристаллических материалов. Екатеринбург, УрО РАН, (2002) с. 380 – 390.]
- Zh.V. Dzyuba, D.V. Spirin, V.N. Udodov. Letters on Materials. 7 (3), 303 (2017). (in Russian) [Ж.В. Дзюба, Д.В. Спирин, В.Н. Удодов. Письма о материалах. 7 (3), 303 (2017).] <u>Crossref</u>
- V. V. Val'kov, M. S. Shustin. J. Low Temp. Phys. 185, 564 (2016). <u>Crossref</u>
- V. V. Val'kov, M. S. Shustin. J. Magn. Magn. Mat. 440, 19 (2017). <u>Crossref</u>
- A. A. Katanin, V. Yu. Irkhin. Physics-Uspekhi. 50 (6), 613 (2007). <u>Crossref</u>
- L. D. Landau, I. M. Khalatnikov. Reports of the USSR Academy of Sciences. 96, 469 (1954). (in Russian) [Л.Д. Ландау, И.М. Халатников. ДАН СССР. 96, 469 (1954).]
- 8. Yu.B. Kudasov, A.S. Korshunov, V.N. Pavlov. Physics-Uspekhi. 55, 1169 (2012). <u>Crossref</u>
- 9. Zh. V. Dzyuba, V. N. Udodov. Physics of the Solid State. 60, 1323 (2018). <u>Crossref</u>
- 10. I.K. Kamilov, Kh.K. Aliev. Physics-Uspekhi. 41, 865 (1998). Crossref
- 11. S. V. Belim. Letters on Materials. 10 (1), 5 (2020). (in Russian) [С. В. Белим. Письма о материалах. 10 (1), 5 (2020).] <u>Crossref</u>
- D. V. Spirin, V.N. Udodov. Technics and technology in XXI century: current status and development prospects. Chapter
 Book 3. Novosibirsk, CSDC (2009) p. 28. (in Russian) [Д.В. Спирин, В.Н. Удодов. Техника и технология в XXI веке: современное состояние и перспективы развития. Глава 2. Книга 3. Новосибирск, ЦРНС (2009) с. 28.]