

УДК 519.17+УДК 519.11+519.684+519.683

MSC2020 68R10 + 82B30 + 65Y05

© В. С. Стронгин^{1,2}, В. О. Трухин^{1,2}, Е. И. Прохоров¹, Э. А. Лобанова^{1,2},
А. И. Анисич¹, М. Д. Черкасов¹, В. И. Белоконь^{1,2}, К. В. Нефедев^{1,2}

Флуктуации магнитных моментов на решетке Апамея

Проведена оцифровка экспериментальных снимков, полученных методом рентгеновского магнитного кругового дихроизма. Рассчитана энергия взаимодействия наночастиц в модели точечных диполей. Частицы, имеющие серый контраст, в большинстве случаев обладают нулевой энергией. С помощью алгоритма Метрополиса в модели дипольного взаимодействия ограниченного радиуса были проведены численные расчеты энергии и теплоемкости для решетки Апамея. Рассчитан вклад квантовых флуктуаций в виде температуры бозе-конденсации.

Ключевые слова: Модель Изинга, XMCD-изображения, высокопроизводительные вычисления на GPU и CPU, статистическая термодинамика.

DOI: <https://doi.org/10.47910/FEMJ202508>

Введение

Массив ферромагнитных nanoостровков пермалоя на плоской суперрешетке может находиться в термодинамическом состоянии спинового льда. Это системы взаимодействующих Изинг-подобных магнитных моментов наночастиц, которые характеризуются возбуждениями даже в основном состоянии. Такие возбуждения обычно называют фрустрациями. Изинг-подобное поведение обусловлено тем, что наночастицы имеют продолговатую форму, что приводит к большим значениям энергии анизотропии формы, которая удерживает магнитный момент в направлении длинной оси. Наличие остаточных возбуждений в основном состоянии приводит к появлению новых физических явлений. На изображениях, полученных методом рентгеновского магнитного кругового дихроизма (XMCD-методом), наночастицы обычно окрашиваются либо белым, либо черным цветом, что зависит от ориентации магнитного момента по отношению к излучению. При этом наблюдается однородность изображений по всей поверхности наночастицы, что подтверждает явление

¹ Дальневосточный федеральный университет, 690922, г. Владивосток, о. Русский, п. Аякс, 10.

² Институт прикладной математики ДВО РАН, 690041, г. Владивосток, ул. Радио, 7.

Электронная почта: strongin.vs@dvfu.ru (В. С. Стронгин).

одно- или монодоменности. Однако оказывается, что некоторые макроспины наночастиц имеют на XMCD-снимках серый контраст. Природа этого явления остается неизученной. Известно, что явление квантовой суперпозиции может отвечать за существование особенностей в низкотемпературном поведении термодинамических параметров, возникших например, из-за эффекта квантового расщепления суперспина во внешнем магнитном поле или квантовых флуктуаций.

Для того чтобы установить природу наблюдаемого явления неопределенности магнитного момента в массивах ферромагнитных наночастиц искусственного спинового льда, необходимы исследования поведения теплоемкости во внешнем магнитном поле и магнитной восприимчивости. Для численного расчета свойств системы взаимодействующих магнитных моментов (спинов), находящихся в термодинамическом равновесии, необходимо иметь полную информацию обо всех возможных состояниях (конфигурациях), такую как, например, энергия взаимодействия, магнитный момент и т.д. Однако на практике статистическая сумма часто остается неопределенной. Это связано с тем, что даже в модели Изинга, как самой простой модели, количество состояний растет экспоненциально. Вычисление термодинамических средних распределения Гиббса по относительно небольшим выборкам наиболее вероятных конфигураций является важной вычислительной задачей. В настоящее время существуют методы Монте-Карло, которые с успехом используются для решения задач этого класса.

Одним из таких методов является алгоритм Метрополиса – Гастингса, который был предложен в 1953 году [1]. Алгоритм Метрополиса – Гастингса является одним из наиболее важных алгоритмов, разработанных в прошлом веке [2]. Метод остается по сей день одним из самых популярных не только в статистической механике, но и в других областях физики, химии, биологии и математики [3, 4]. Алгоритм Метрополиса может быть использован для расчета квантовых систем [5–8]. Соотношения для вероятности принятия новой конфигурации используются в квантовом Монте-Карло [9–13].

1. Постановка задачи

Искусственный спиновый лед — это термодинамическое состояние массива однодоменных ферромагнитных наночастиц, которые изготавливаются литографически. Произвольная геометрия суперрешеток позволяет создавать структуры, не встречающиеся в естественной среде. Плоские решетки удобны для прямого экспериментального наблюдения поведения фрустрированного магнетизма и для проверки теоретических моделей статистической механики. Одной из таких решеток является геометрически фрустрированная решетка Апамея, рис. 1(а). Экспериментальные XMCD-изображения выполнены с помощью рентгеновского магнитного кругового дихроизма при температуре 250 К, выдержка 10 секунд. Участок был выбран по принципу наибольшего количества серых частиц.

Размеры наночастиц, размещенных на решетке Апамея, $2.6 \times 360 \times 120$ нм³, намагниченность насыщения $\mu = 100$ кА/м, параметр суперрешетки 500 нм. Таким образом, $\gamma = 1.268277 \times 10^{-21}$ Дж. Энергия диполь-дипольного взаимодействия между

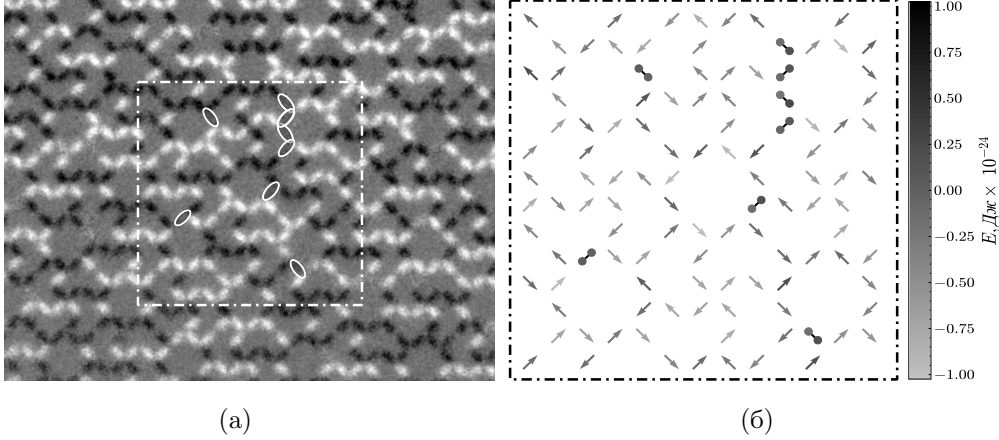


Рис. 1. Экспериментальные и теоретические результаты исследования макроспинового льда на решетке Апамея. а) XMCD-снимок участка решетки Апамея; б) численный расчет энергии диполь-дипольного взаимодействия для выделенной области экспериментального снимка.

$\vec{m}_i$ и $\vec{m}_j$ магнитным моментом

$$E_{ij} = \gamma \left(\frac{(\vec{m}_i \vec{m}_j)}{|\vec{r}_{ij}|^3} - 3 \frac{(\vec{m}_i \vec{r}_{ij})(\vec{m}_j \vec{r}_{ij})}{|\vec{r}_{ij}|^5} \right). \quad (1)$$

На рис. 1(б) стрелками изображены магнитные моменты наночастиц, принадлежащие выделенному участку на рис. 1(а). В расчете энергии диполь-дипольного взаимодействия учитывались только магнитные моменты, которые были однозначно определены на снимке рис. 1(а).

В расчете не участвовали частицы с неопределенными магнитными моментами (они имели серый контраст), поскольку при расчете серых частиц их энергия взаимодействия должна была бы учитываться дважды, то есть для двух возможных направлений. Эта ситуация визуализирована при помощи двойной стрелки. Наночастицы с фиксированным магнитным моментом создают магнитное поле независимо от ориентации магнитного момента серой наночастицы. Радиус, внутри которого рассчитывалась энергия взаимодействия частиц, выбран в размере одного параметра решетки, что можно считать как взаимодействие только ближайших соседей, открытые граничные условия выбраны по причине того, что расчет производился по экспериментальным данным.

На рис. 2 представлено расчетное основное состояние решетки Апамея для модели взаимодействия диполей на расстоянии пяти постоянных суперрешетки.

Задача состоит в том, чтобы по экспериментальным графикам для имеющихся конфигураций рассчитать энергии взаимодействия для суперспинов в модели ограниченного радиуса.

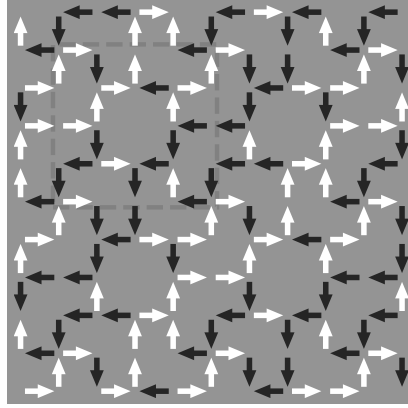


Рис. 2. Основное состояние системы взаимодействующих диполей на решетке Апамея. Выделенная область может быть использована для трансляции.

2. Алгоритм Метрополиса

Предположим, что система из N фиксированных на плоскости наночастиц изолирована и замкнута. При этом обмен системы энергией с термостатом или бесконечно большим резервуаром приводит к термодинамическим флуктуациям дипольно взаимодействующих Изинг-подобных моментов наночастиц. Статистическая сумма

$$Z = \sum_{i=1}^{2^N} e^{-\frac{E_i}{k_B T}}$$

учитывает все возможные состояния (конфигурации). k_B — постоянная Больцмана. Вероятность того, что при температуре T система пребывает в состоянии с энергией E_i

$$p(E_i) = \frac{e^{-\frac{E_i}{k_B T}}}{Z}.$$

Статистическая сумма даже для относительно небольшого числа частиц неизвестна. Поэтому предлагается вычислить вероятность перехода с уровня E_i на уровень E_j как

$$p(E_i \rightarrow E_j) = \begin{cases} 1, & \text{если } E_i > E_j \\ e^{-\frac{E_i - E_j}{k_B T}}, & \text{если } E_i < E_j. \end{cases} \quad (2)$$

3. Квантовый вклад

При определении конфигураций основного состояния необходимо рассмотреть систему при температуре $T \rightarrow 0$. Для отдельно взятого диполя число фононных орбиталей $D(\omega)$, согласно [14], определяется как

$$D(\omega) = \frac{3}{2} \frac{V}{2\pi^2 v_s^3} \omega^3,$$

где ω — частота осцилляторов, V — объем частицы, v_s — скорость упругой волны, усредненная по поляризациям, частотам и направлениям.

Фононный спектр обрывается при $\omega = \omega_D$, при соответствующий длине волны, по порядку величины, совпадающей с постоянной решетки a . Для наночастицы с максимальным размером L должна существовать минимальная частота $\omega_{min} \sim v_s/\lambda$. При L/a минимальная частота будет много меньше частоты обрезания спектра $\omega_{min} \ll \omega_D$.

Очевидно, что должно выполняться условие

$$3N = \int_{\omega_{min}}^{\omega_D} D(\omega) d\omega \approx \int_0^{\omega_D} D(\omega) d\omega = \frac{V}{2\pi^2 v_s^3} \omega_D^3,$$

$$\omega_D = \left(\frac{6\pi^2 N v_s^3}{V} \right)^{1/3}.$$

Для наночастиц спинового льда $V/N = a^3/4$ (ГЦК решетка). Так как при температуре $T^* < \hbar\omega_{min}/2k_B$ происходит бозе-конденсация [15], Можно считать, что при $T < T^*$ все осцилляторы имеют нулевую энергию $\hbar\omega_{min}/2$. Принимая во внимание соотношение $\omega_D/\omega_{min} = L/a$, с учетом соотношения $\hbar\omega_D/k_B = \vartheta$ (температура Дебая для объёмных материалов), температуру бозе-конденсации можно оценить как

$$T^* \approx \frac{\vartheta}{\frac{L}{a} k_B},$$

(для кубической наночастицы $L/a = \sqrt[3]{N}$). Для пермаллоя $\vartheta \approx 420$ К. Если объем наночастицы $V = 2.6 \times 360 \times 120$ нм³, параметр решетки $a = 0.34$ нм, то $T^* = 3.07$ К.

Таким образом, квантовые флуктуации можно учесть введением T^* в соотношение (2), определяющее вероятность обнаружения в состоянии с энергией взаимодействия E_i . В случае наличия квантового вклада вероятность $p(E_i \rightarrow E_j)$ будет рассчитываться как

$$p(E_i \rightarrow E_j) = \begin{cases} 1, & \text{если } E_i > E_j \\ e^{-\frac{E_i - E_j}{k_B(T + T^*)}}, & \text{если } E_i < E_j, \end{cases}$$

где T^* определяет вклад квантовых флуктуаций в динамику магнитного момента наночастицы. Расчёт квантового вклада выполнен для условия, когда все осцилляторы имеют нулевую энергию.

4. Теплоемкость в модели ближайшего окружения

Теплоемкость была рассчитана для $N = 1280$ диполей

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

где T — температура, N . Средняя энергия находится по формуле

$$\langle E \rangle = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n E_i,$$

где n — количество принятых конфигураций. Средняя энергия в квадрате находится по формуле

$$\langle E^2 \rangle = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n E_i^2.$$

Для устранения краевых эффектов были использованы периодические граничные условия. При каждой исследуемой температуре выполнялось сначала 10^5 стабилизационных шагов Монте-Карло, а затем 10^6 шагов для вычисления термодинамических величин. Один Монте-Карло шаг равен N попыткам перевернуть случайную частицу. Расчеты проводились с учетом вклада квантовых флуктуаций. В обоих случаях данные усреднялись по 100 независимым запускам, каждый из которых начинался из предполагаемого основного состояния. На рис. 3 представлено температурное поведение теплоемкости для модели взаимодействующих ближайших соседей. Энергия взаимодействия (1) рассчитывается только для пар диполей, которые находятся на расстоянии $r_{ij} \leq 1$, т.е. в модели ограниченного радиуса, что соответствует параметру суперрешетки или 500 нм.

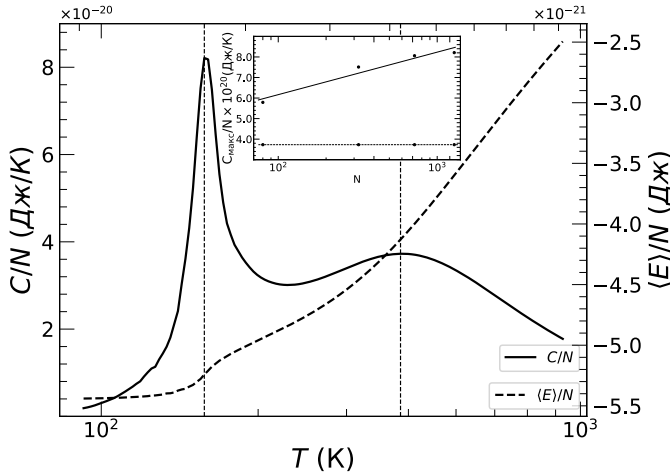


Рис. 3. Теплоемкость для системы $N = 1280$ магнитных диполей, размещенных на гранях решетки Апамея. Черная прерывистая линия — средняя термодинамическая удельная энергия. Вертикальные пунктирные линии — низкотемпературный пик теплоёмкости. Вставка: зависимость высот пиков теплоемкости от количества диполей (черная линия тренда — низкотемпературный пик, пунктирная — высокотемпературный пик).

Расчеты показали, что значение температуры бозе-конденсации $T^*=3K$ слишком мало, чтобы квантовые флуктуации влияли на поведение теплоемкости в области высоких температур, т.е. для температур, при которых наблюдаются особенности в поведении теплоемкости.

5. Магнитная восприимчивость и теплоемкость в поле

Результаты, полученные в ходе численных экспериментов во внешнем поле в модели ближайших взаимодействий, представлены на рис. 4

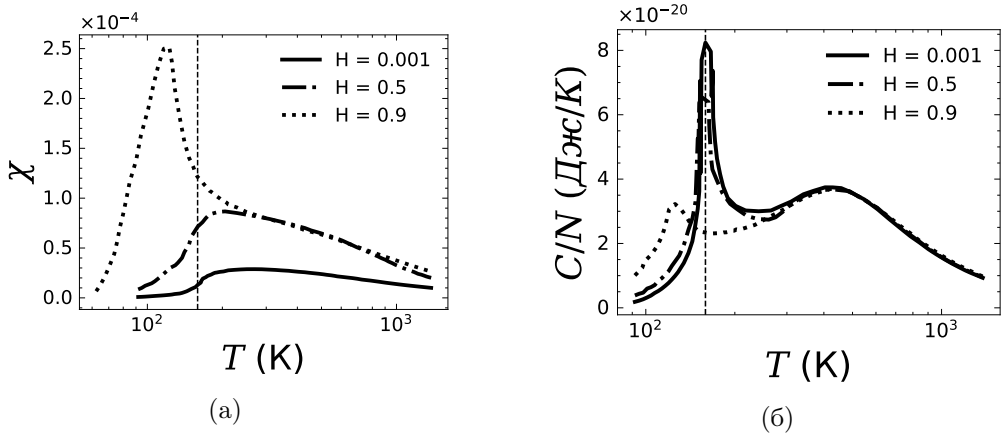


Рис. 4. Результаты численных экспериментов для 1280 диполей: а) магнитная восприимчивость, б) теплоёмкость, при разных значениях магнитного поля. Вертикальной прерывистой линией обозначено значение температуры при максимуме теплоёмкости в отсутствие внешнего магнитного поля. Угол между вектором магнитного поля и вектором намагниченности наночастиц составляет 45 градусов. Радиус взаимодействия спинов — 1.0 постоянных решетки.

Магнитная восприимчивость была рассчитана формулой

$$\chi(T) = \frac{\langle M^2 \rangle - \langle M \rangle^2}{k_B T N},$$

где M — модуль вектора спинового избытка, усредненный по конфигурациям в ходе численного эксперимента Монте-Карло во внешнем магнитном поле $\vec{h}$. Теплоёмкость рассчитывалась по формуле (3), где

$$\langle E \rangle = \frac{1}{N} \sum_i^N (E_{int} + E_z),$$

где

$$E_z = -(\vec{h} \vec{M}),$$

— энергия Зеемана конфигурации во внешнем магнитном поле. Вычисления проводились методом Метрополиса. Использовалось 10^5 прогревных шагов для термализации системы и приведения ее в равновесное состояние и 10^6 тысяч статистических шагов Монте-Карло, на основе которых рассчитывались параметры спиновой системы.

На рис. 4 показано, что пик магнитной восприимчивости смещается влево при больших значениях внешнего поля относительно пика теплоёмкости в отсутствии магнитного поля. С уменьшением внешнего поля пик магнитной восприимчивости уменьшается.

При увеличении магнитного поля низкотемпературный пик уменьшается до того момента, пока полностью не исчезнет. Таким образом, что при высоком магнитном поле спины ориентированы вдоль вектора магнитного поля, что означает отсутствие флуктуаций.

6. Флуктуации магнитных моментов

На рис. 5 представлены результаты численных расчетов энергии взаимодействия суперспинов, испытывающих обращения под действием классических термодинамических флуктуаций (моделирование Монте-Карло по алгоритму Метрополиса). Графики получились симметричными относительно нуля, потому что возможная энергия взаимодействия наночастиц с неопределенностью направления магнитного момента рассчитана с точностью до знака.

Выполнена оцифровка 100 снимков ХМCD (просвечивающей электронной микроскопии) для температур в диапазоне от 250 К до 310 К с шагом 10 К. Данные об энергии взаимодействия серых частиц представлены на рис. 5. Энергия рассчитывалась по формуле (1). Наблюдается хорошее согласие результатов численных расчетов и натурального эксперимента в области от $E = -0.5 \times 10^{-20}$ Дж до $E = 0.5 \times 10^{-20}$ Дж в модели, в которой радиус взаимодействия составляет пять параметров решетки.

На рис. 5 наблюдаются видимое различие данных натурального эксперимента (ХМCD) и численного эксперимента (Монте-Карло) в области относительно низких температур. Количество моментов, испытывающих флуктуации, заметно уменьшается для низких температур. Это может быть связано с неравновесными процессами, которые могут иметь место в эксперименте, а также с другими вкладами.

Наибольшее количество обращений магнитных моментов происходит для частиц, энергия взаимодействия которых близка к нулю или равна нулю. Энергия, равная нулю, понижает энергетический барьер между состоянием спина «вверх» и «вниз», а это понижает значение энергии термодинамических или квантовых флуктуаций, необходимое для осуществления переключения магнитного момента.

Наблюдаемая в численных и натуральных экспериментах дискретность уровней энергии взаимодействия магнитных моментов наноостровков решетки Апамея обусловлена особенностями спинового льда, где дискретными свойствами обладают направления моментов, расстояния и т.д.

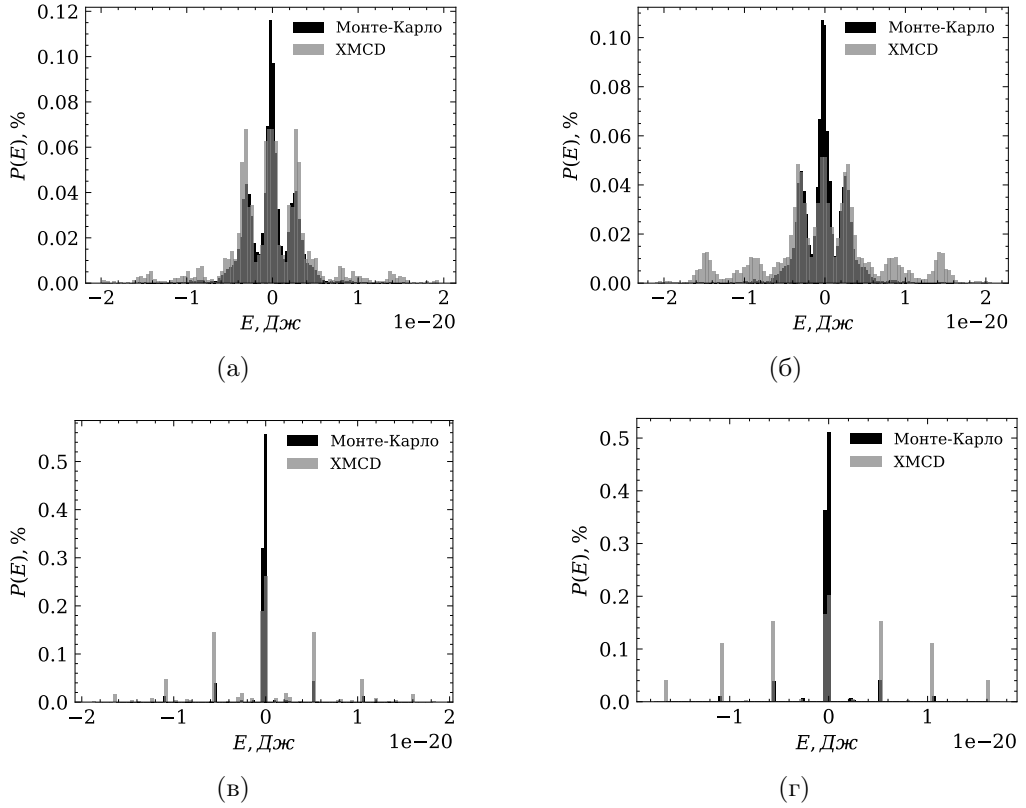


Рис. 5. Доля частиц, магнитный момент которых обращается в ходе численного эксперимента Монте-Карло, а так же на экспериментальных снимках, имеющих заданную энергию взаимодействия. а) 240 К в модели дальнего действия, б) 310 К в модели дальнего действия, в) 240К в модели ближнего действия (радиус взаимодействия 1), г) 310К в модели ближнего действия (радиус взаимодействия 1).

Заключение

В работе приведены результаты численных расчетов искусственного спинного льда в модели точечных диполей. Экспериментальные XMCD-снимки были обработаны (оцифрованы), определены декартовы координаты центров наночастиц и компоненты векторов намагниченности. Численные расчеты произведены методом Монте-Карло.

Выполнен численный анализ наблюдаемых в эксперименте при отличной от нуля температуре конфигураций XMCD двумерных массивов макроспинового льда. Рассчитано распределение энергии дипольного взаимодействия суперспинов. Оказалось, что большинство частиц с неопределенной ориентацией магнитного момента имеют энергию взаимодействия, равную нулю. Однако часть магнитных моментов некоторое время находится в минимуме энергии взаимодействия, из которого выхо-

дит за счет термодинамических флуктуаций. В численных расчетах не участвовали магнитные моменты, ориентация которых не была определена в экспериментах на ХМCD-снимках.

Рассчитана энергия квантового вклада, которая оказалась порядка трех Кельвинов. Предложен метод численного расчета Монте-Карло с учетом квантового вклада. Экспериментальные данные были получены при высоких температурах, поэтому влиянием квантовых флуктуаций на состояние намагниченности наночастиц можно пренебречь.

В модели точечных диполей, взаимодействующих до ближайших соседей, теплоемкость решетки показывает рост низкотемпературного пика теплоемкости, что может быть признаком фазового перехода.

Численные расчеты методом Монте-Карло магнитной восприимчивости и теплоемкости во внешнем магнитном поле показывают уменьшение высоты низкотемпературного пика теплоемкости с увеличением модуля поля. Это, возможно, связано с подавлением явлений хаотизации спина. Рост пика магнитной восприимчивости в магнитном поле связан с ростом энергии Зеемана и, как следствие, более высокой вероятностью конфигураций с высоким значением спинового избытка.

Рассчитана энергия взаимодействия серых частиц по результатам оцифровки экспериментальных ХМCD-снимков в модели точечных диполей. Наибольшее число моментов, которые подвержены термодинамическим флуктуациям, имеет энергию, близкую к нулю. В ходе численного эксперимента методом Метрополиса были рассчитаны энергии взаимодействия магнитных моментов, испытывающих обращение. Результаты численных экспериментов и результаты оцифровки экспериментальных данных показывают хорошее согласие в области значений энергий, близких к нулю, с точностью до знака. Однако на экспериментальных снимках обнаруживаются частицы, магнитные моменты которых имеют очень низкую энергию взаимодействия. Таким образом, явление «серого» контраста на ХМCD-снимках должно быть изучено более детально.

Благодарности

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 25-22-00177 <https://rscf.ru/project/25-22-00177/>

Список литературы

- [1] Metropolis, Nicholas, Rosenbluth, Arianna W and Rosenbluth, “Equation of state calculations by fast computing machines”, *The journal of chemical physics*, **21**:6, (1953), 1087–1092.
- [2] Beichl, Isabel, Sullivan, Francis, “The metropolis algorithm”, *Computing in Science & Engineering*, **2**:1, (2000), 65–69.
- [3] Chib, Siddhartha, Greenberg, Edward, “Understanding the metropolis-hastings algorithm”, *The american statistician*, **49**:4, (1995), 327–335.
- [4] Newman, Mark EJ, Barkema, Gerard T, “Monte Carlo methods in statistical physics”, 1999.

- [5] Jersák, J, “Numerical simulations in quantum field theory of elementary particles”, *Journal of computational and applied mathematics*, **63**:1-3, (1995), 49–56.
- [6] Chen, Ziheng, Zhou, Zhennan, “The Bayesian inversion problem for thermal average sampling of quantum systems”, *Journal of Computational Physics*, **413**, (2020), 109448.
- [7] Yan, Zheng, Wu, Yongzheng and Liu, “Sweeping cluster algorithm for quantum spin systems with strong geometric restrictions”, *Physical Review B*, **99**:16, (2019), 165135.
- [8] Vieijra, Tom, Haegeman, Jutho and Verstraete, “Direct sampling of projected entangled-pair states”, *Physical Review B*, **104**:23, (2021), 235141.
- [9] Gunacker, Patrik, Wallerberger, Markus and Ribic, “Worm-improved estimators in continuous-time quantum Monte Carlo”, *Physical Review B*, **94**:12, (2016), 125153.
- [10] Moutenet, Alice, Seth, Priyanka and Ferrero, “Cancellation of vacuum diagrams and the long-time limit in out-of-equilibrium diagrammatic quantum Monte Carlo”, *Physical Review B*, **100**:8, (2019), 085125.
- [11] Kora, Youssef, Boninsegni, Massimo, “Dynamic structure factor of superfluid He 4 from quantum Monte Carlo: Maximum entropy revisited”, *Physical Review B*, **98**:13, (2018), 134509.
- [12] Beyl, Stefan, Goth, Florian and Assaad, “Revisiting the hybrid quantum Monte Carlo method for Hubbard and electron-phonon models”, *Physical Review B*, **97**:8, (2018), 085144.
- [13] Alet, Fabien, Damle, Kedar and Pujari, “Sign-problem-free Monte Carlo simulation of certain frustrated quantum magnets”, *Physical review letters*, **117**:19, (2016), 197203.
- [14] Киттель, Чарльз, “Статистическая термодинамика”, *М.: наука*, **5**, (1977).
- [15] Иванов В. Н., Иванов И. В., “Тепловое излучение системы слабосвязанных осцилляторов, испытывающих перманентное стохастическое возмущение”, *Оптика атмосферы и океана*, **20**:1, (2007), 31–39.

Поступила в редакцию
17 марта 2025 г.

Исследование выполнено за счет гранта
Российского научного фонда № 25-22-00177,
<https://rscf.ru/project/25-22-00177/>.

Strongin V. S.^{1,2}, Trukhin V. O.^{1,2}, Prokhorov E. I.¹, Lobanova E. A.^{1,2}, Anisich A. I.¹, Cherkasov M. D.¹, Belokon V. I.^{1,2}, Nefedev K. V.^{1,2} Fluctuations of magnetic moments on the Apamea lattice. *Far Eastern Mathematical Journal*. 2025. V. 25. No 1. P. 90–101.

¹Far Eastern Federal University

²Institute for Applied Mathematics, Far Eastern Branch, Russian Academy of Sciences

ABSTRACT

Experimental images obtained by X-ray magnetic circular dichroism were digitized. The interaction energy of nanoparticles in the point dipole model was calculated. Particles having gray contrast in most cases have zero energy. Numerical calculations of the energy and heat capacity for the Apamea lattice were performed using the Metropolis algorithm in the limited radius dipole interaction model. The contribution of quantum fluctuations in the form of the Bose condensation temperature was calculated.

Key words: *Ising model, XMCD images, GPU and CPU high performance calculations, statistical thermodynamics.*