



ИПМ им.М.В.Келдыша РАН • Электронная библиотека

Препринты ИПМ • Препринт № 81 за 2024 г.

ISSN 2071-2898 (Print)
ISSN 2071-2901 (Online)

А.В. Иванов

Расчет энтропии
классического
ферромагнетика Гейзенберга
на основе аппроксимации
двухчастичных функций
распределения

Статья доступна по лицензии
[Creative Commons Attribution 4.0 International](https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/)



Рекомендуемая форма библиографической ссылки: Иванов А.В. Расчет энтропии классического ферромагнетика Гейзенберга на основе аппроксимации двухчастичных функций распределения // Препринты ИПМ им. М.В.Келдыша. 2024. № 81. 23 с.
<https://doi.org/10.20948/prepr-2024-81>
<https://library.keldysh.ru/preprint.asp?id=2024-81>

**Ордена Ленина
ИНСТИТУТ ПРИКЛАДНОЙ МАТЕМАТИКИ
имени М.В. КЕЛДЫША
Российской академии наук**

А.В. Иванов

**Расчет энтропии классического
ферромагнетика Гейзенберга на основе
аппроксимации двухчастичных функций
распределения**

Москва — 2024

Иванов А.В.

e-mail: aiv.racs@gmail.com

Расчет энтропии классического ферромагнетика Гейзенберга на основе аппроксимации двухчастичных функций распределения

В работе приведен новый метод прямого расчета энтропии классического магнетика Гейзенберга на основе аппроксимации двухчастичной функции распределения. Такая аппроксимация, учитывающая корреляции между магнитными моментами, является в том числе основой для создания системы уравнений корреляционной магнитодинамики.

Приведенный в работе метод приближенный, не имеет строгого обоснования, и может рассматриваться как некоторое разложение, каждый следующий член которого, основываясь на старших функциях распределения, позволяет повышать точность.

Работоспособность метода продемонстрирована в большой серии вычислительных экспериментов для трех типов кристаллической решетки (примитивной, объемноцентрированной и гранецентрированной) в широком диапазоне параметров.

Ключевые слова: моделирование магнетиков «атом-в-атом», уравнения корреляционной магнитодинамики

Anton Valeryevich Ivanov

e-mail: aiv.racs@gmail.com

Calculation of the entropy of a classical Heisenberg ferromagnet based on the approximation of two-particle distribution functions

The paper presents a new method for directly calculating the entropy of a classical Heisenberg magnet based on the approximation of a two-particle distribution function. Such an approximation, taking into account the correlations between magnetic moments, is also the basis for creating a system of equations of correlation magnetodynamics.

The method presented in the paper is approximate, does not have a strict justification and can be considered as a certain expansion, each subsequent member of which, based on the highest distribution functions, allows to increase the accuracy.

The efficiency of the method is demonstrated in a large series of computational experiments for three types of crystal lattice (primitive, body-centered and face-centered) in a wide range of parameters.

Keywords: atomistic spin dynamics, correlation magnetodynamics

Содержание

1	Введение	3
2	Атомистическая модель магнетика	4
3	Энтропия магнетика	5
4	Результаты расчета энтропии	11
5	Минимизация свободной энергии	16
6	Заключение	21
	Список литературы	21

1. Введение

Вычисление энтропии (или статистической суммы) для системы многих взаимодействующих частиц является одной из центральных проблем статистической физики. Магнетики традиционно являются одним из примеров такой системы. Точные аналитические решения найдены для одно- и двумерной моделей Изинга, а также для одномерной модели классического магнетика Гейзенберга* [1]. Прямой численный расчет статистической суммы методом Монте–Карло, как правило, возможен только для систем с небольшим числом частиц в рамках моделей Изинга или Поттса (со счетным числом возможных ориентаций спина, [2]). Традиционные методы Монте–Карло для классического магнетика Гейзенберга не дают результатов при большом числе частиц. Попытка построения полуаналитического алгоритма расчета статистической суммы для классического магнетика Гейзенберга была предпринята в [3], но пока что эта проблема далека от окончательного разрешения.

С другой стороны, для классического магнетика Гейзенберга возможны как поиск стационарного состояния методом Монте–Карло [4], так и решение системы стохастических дифференциальных уравнений Ландау–Лифшица на эволюцию магнитных моментов (т.н. Atomistic Spin Dynamics — ASD, [5]) до установления. В случае квазистационарного изменения температуры, при движении от очень больших температур (для которых известно значение энтропии) энтропия системы может быть найдена на основе второго начала термодинамики. Надо отметить, что такой подход не является бесспорным. Для системы невзаимодействующих частиц можно строго доказать, что термодинамическая энтропия (вводимая в термодинамике), равна статистической энтропии (вводимой в статистической физике). Для системы многих взаимодействующих частиц этот вопрос остается открытым.

В данной работе приведен новый приближенный метод прямого расчета статистической энтропии на основе аппроксимации двухчастичных функций распределения. Аппроксимация учитывает корреляции между ближайшими

*В модели Изинга допускаются ориентации спина строго вверх или вниз, в классической модели Гейзенберга спин имеет постоянный модуль и может быть ориентирован произвольным образом

соседями. Традиционная аппроксимация двухчастичных функций распределения в приближении среднего поля (без учета корреляций между ближайшими соседями) общепринята и применяется для вывода уравнений сплошной среды Ландау–Лифшица–Блоха [6–8]. Для магнетиков такая аппроксимация априори неверна, так как за счет сильного локального обменного взаимодействия корреляции между ближайшими соседями существенны и присутствуют даже в парамагнитной фазе. Аппроксимация двухчастичной функции распределения, учитывающая корреляции между ближайшими магнитными моментами, была построена в [9], что послужило в итоге основой для создания системы уравнений корреляционной магнитодинамики [10], являющейся развитием уравнения Ландау–Лифшица–Блоха. Здесь будет показано, что такая аппроксимация двухчастичной функции распределения позволяет в том числе производить прямой расчет энтропии магнетика с точностью до долей процента.

Построенный в работе метод не является строго обоснованным и является обобщением результатов многочисленных вычислительных экспериментов, но его работоспособность показана для трех типов кристаллических решеток (примитивной, объемноцентрированной и гранецентрированной) в широком диапазоне параметров.

2. Атомистическая модель магнетика

Эволюция магнитных моментов отдельных атомов в модели классического магнетика Гейзенберга (ASD) описывается системой стохастических дифференциальных уравнений Ландау–Лифшица [5]:

$$\dot{\mathbf{m}}_i = -\gamma [\mathbf{m}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{eff}}] - \alpha \gamma [\mathbf{m}_i \times [\mathbf{m}_i \times \mathbf{H}_i^{\text{eff}}]] + \sqrt{2\alpha\gamma T} [\mathbf{m}_i \times \boldsymbol{\xi}_i(t)]; \quad (1)$$

$$\mathbf{H}_i^{\text{eff}} = -\nabla_{\mathbf{m}_i} (W^{\text{exch}} + W^{\text{an}} + W^{\text{ext}}) = \mathbf{H}_i^{\text{exch}} + \mathbf{H}_i^{\text{an}} + \mathbf{H}^{\text{ext}};$$

$$W^{\text{exch}} = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{ij} (\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j), \quad W^{\text{an}} = -K \sum_i (\mathbf{n}_K \cdot \mathbf{m}_i)^2, \quad W^{\text{ext}} = - \sum_i \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{H}^{\text{ext}};$$

$$\mathbf{H}_i^{\text{exch}} = \sum_j J_{ij} \mathbf{m}_j, \quad \mathbf{H}_i^{\text{an}} = 2K \mathbf{n}_K (\mathbf{n}_K \cdot \mathbf{m}_i),$$

где γ — гиромагнитное соотношение; α — параметр затухания; \mathbf{H}^{eff} — эффективное магнитное поле, W — полная энергия системы; T — температура системы в единицах энергии, $\boldsymbol{\xi}_i(t)$ — попарно независимые случайные векторы, составленные из δ -коррелированных случайных источников с нормальным распределением, единичной дисперсией и нулевым математическим ожиданием; $\nabla_{\mathbf{m}_i}$ — оператор ∇ по магнитному моменту \mathbf{m}_i ; \mathbf{H}^{exch} — поле обменного взаимодействия, J_{ij} — обменный интеграл (как правило, отличен от нуля только

для ближайших соседей); \mathbf{H}^{an} — поле анизотропии типа легкая ось или легкая плоскость, K — параметр анизотропии, \mathbf{n}_K — направление оси анизотропии, $|\mathbf{n}_K| = 1$. Здесь не учитывается диполь–дипольное (магнитостатическое) взаимодействие.

Система (1) может быть решена численно, модифицированным методом Рунге–Кутты четвертого порядка [11], в широком диапазоне значений температуры, внешнего поля, анизотропии и других параметров для различных кристаллических решеток.

При численном решении (1) в случае достаточно продолжительного расчета (на временах много больше $1/\alpha$) при постоянных внешних параметрах система гарантированно и контролируемо приходит в равновесие с термостатом (кристаллической решеткой, являющейся источником температурных флуктуаций). В окрестностях фазового перехода времена релаксации могут быть на два порядка и более выше, чем $1/\alpha$, но в любом случае они являются конечными для образца конечного размера. В итоге можно рассчитать равновесные зависимости средней намагниченности $\langle m \rangle(T)$ и энергии $W(T)$ от температуры,

$$W = -\frac{n_b J}{2} \langle \eta \rangle - \langle \mathbf{m} \rangle \mathbf{H}^{\text{ext}} - K \langle (\mathbf{n}_K \cdot \mathbf{m})^2 \rangle, \quad \langle \eta \rangle = \langle \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j \rangle,$$

где $\langle \eta \rangle$ — уровень парных корреляций для ближайших соседей, n_b — число ближайших соседей.

Здесь мы ограничимся рассмотрением одноосного случая, при котором $\langle \mathbf{m} \rangle \parallel \mathbf{H}^{\text{ext}} \parallel \mathbf{n}_K$, в итоге несложно получить [12]

$$W = -\frac{n_b J}{2} \langle \eta \rangle - \langle m \rangle H^{\text{ext}} - K(1 - 2\mu_p), \quad \mu_p = \frac{\langle m \rangle}{p}, \quad \langle m \rangle = \mathcal{L}(p), \quad (2)$$

где p — параметр аппроксимации одночастичной функции распределения по намагниченности $f(\mathbf{m}) \sim e^{\mathbf{p} \cdot \mathbf{m}}$, \mathcal{L} — функция Ланжевена, $\mathcal{L}(p) = \text{cth } p - 1/p$.

3. Энтропия магнетика

Мы будем говорить об энтропии, энергии и прочих термодинамических потенциалах в расчете на одну частицу.

Сразу заметим, что существует как минимум два независимых варианта введения энтропии. С точки зрения статистической физики энтропия $S^{(N)}$ вводится через N -частичную функция распределения как

$$S^{(N)} = -\frac{\langle \ln f^{(N)} \rangle}{N} = \frac{\ln Z^{(N)}}{N} + \frac{W}{T}, \quad \lim_{T \rightarrow \infty} f^{(N)} = 4\pi, \quad \lim_{T \rightarrow \infty} S^{(N)} = \ln 4\pi.$$

Прямой расчет энтропии на основе $f^{(N)}$ при актуальных значениях температур

упирается в расчет статистической суммы $Z^{(N)}$

$$Z^{(N)} = \int_{S_2} \cdots \int_{S_2} \exp \left[-\frac{W^{\text{exch}} + W^{\text{an}} + W^{\text{ext}}}{T} \right] d\mathbf{m}_1 \dots d\mathbf{m}_N.$$

С точки зрения второго начала термодинамики энтропия S_T определена с точностью до константы, но, накладывая дополнительное условие при $T \rightarrow \infty$, можно получить

$$dS_T = \frac{dW}{T}, \quad \lim_{T \rightarrow \infty} S_T = \lim_{T \rightarrow \infty} S^{(N)} \rightarrow S_T = \ln 4\pi + \int_{\infty}^T \frac{dW}{dT'} \frac{dT'}{T'}. \quad (3)$$

Далее мы будем предполагать, что $S_T = S^{(N)} \equiv S$ во всем диапазоне параметров. Это равенство легко доказать в случае парамагнетика (ансамбля невзаимодействующих магнитных моментов), но в случае системы многих сильно взаимодействующих частиц вопрос остается открытым.

Рассмотрим высокотемпературную асимптотику $S(T)$ при $H^{\text{ext}} = 0$, $K = 0$. При $T \gg J$ двухчастичная функция распределения $f^{(2)}$ имеет вид

$$f^{(2)}(\mathbf{m}_i, \mathbf{m}_j) \approx \frac{e^{J\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j / T}}{Z^{(2)}}, \quad Z^{(2)} = \iint_{S_2} e^{J\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j / T} d\mathbf{m}_i d\mathbf{m}_j,$$

откуда

$$W = -\frac{n_b J}{2} \mathcal{L} \left(\frac{J}{T} \right) \approx -\frac{n_b J^2}{6T},$$

и, согласно (3),

$$S \approx \ln 4\pi - \frac{n_b J^2}{12T^2}. \quad (4)$$

В то же время, согласно определению энтропии из статистической физики, при высоких температурах энтропия, задаваемая $f^{(2)}$, будет иметь вид

$$S^{(2)} = -\frac{\langle \ln f^{(2)} \rangle}{2} \approx \ln 4\pi - \frac{J^2}{12T^2}. \quad (5)$$

Можно заметить, что выражения (4) и (5) отличаются только множителем n_b (числом ближайших соседей) во втором слагаемом.

Рассмотрим более подробно вид энтропии, получаемой из младших функций распределения. Энтропия $S^{(1)}$ одночастичной функции распределения

$$f^{(1)} \approx \frac{e^{\mathbf{p} \cdot \mathbf{m}}}{\mathcal{Z}(p)}, \quad \mathcal{Z}(p) = 4\pi \frac{\text{sh } p}{p}, \quad S^{(1)} = -\langle \ln f^{(1)} \rangle = \ln \mathcal{Z}(p) - p \langle m \rangle, \quad (6)$$

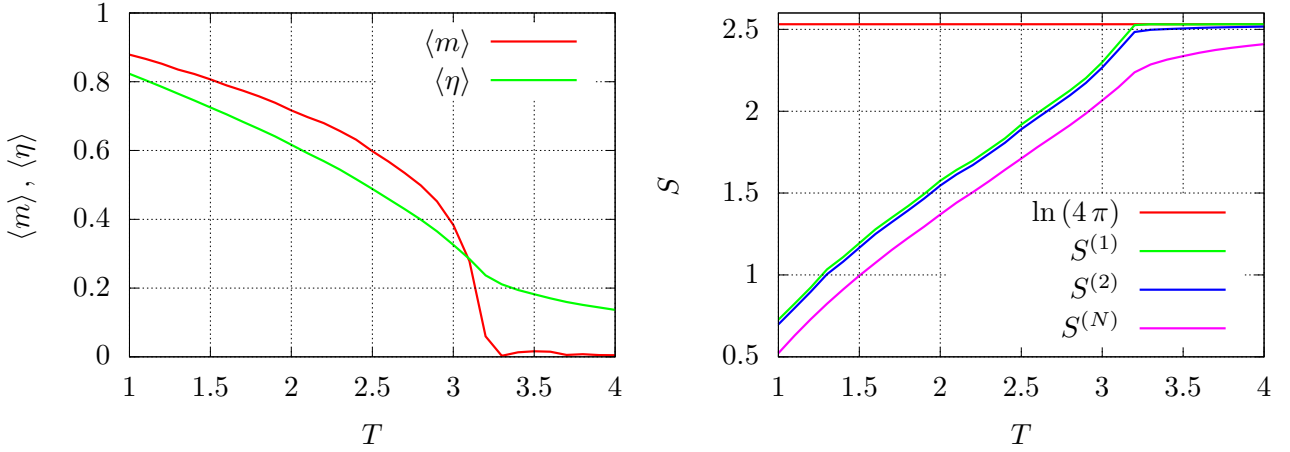


Рис. 1. Полученные из ASD (1) зависимости средней намагниченности $\langle m \rangle$, парных корреляций $\langle \eta \rangle$ и различных вариантов энтропии от температуры T для ферромагнетика с FCC решеткой при $H^{\text{ext}} = 0$, $K = 0$

является точным значением энтропии для изотропного ($K = 0$) парамагнетика за счет отсутствия взаимодействия. Для ферромагнетика такое выражение для энтропии оказывается слишком грубым, рис. 1.

Традиционно для магнетика двухчастичная функция распределения вводилась в приближении среднего поля как $f_{ij}^{(2)} \approx f_i^{(1)} f_j^{(1)}$. Такое приближение является слишком грубым, поскольку за счет сильного обменного взаимодействия корреляции между ближайшими магнитными моментами существуют даже в парамагнитной фазе. Аппроксимация двухчастичной функции распределения, учитывающая корреляции между ближайшими магнитными моментами, была построена в [9]:

$$f_{ij}^{(2)} \approx \frac{1}{Z_{ij}^{(2)}} \left[f_i^{(1)}(\mathbf{m}_i, t) f_j^{(1)}(\mathbf{m}_j, t) \right]^\rho e^{\lambda \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j}, \quad (7)$$

$$Z_{ij}^{(2)} = \iint_{S_2} \left[f_i^{(1)}(\mathbf{m}_i, t) f_j^{(1)}(\mathbf{m}_j, t) \right]^\rho e^{\lambda \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j} d\mathbf{m}_i d\mathbf{m}_j,$$

где $\lambda \geq 0$ — параметр, описывающий корреляции (включая косвенные) между ближайшими магнитными моментами \mathbf{m}_i и \mathbf{m}_j , $\frac{1}{2} \leq \rho \leq 1$ — степень, необходимая для выполнения условия $f_i^{(1)} \approx \int_{S_2} f_{ij}^{(2)} d\mathbf{m}_j$. Такая аппроксимация применима для любой двухчастичной функции распределения.

При $\lambda \ll 1$ аппроксимация (7) переходит в приближение среднего поля и $\rho \rightarrow 1$. При $\lambda \gg 1$ экспонента в аппроксимации (7) фактически переходит в δ -функцию $\delta(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j)$ и $\rho \rightarrow \frac{1}{2}$. Несмотря на степень ρ , за счет $Z^{(2)}$ аппроксимация (7) имеет размерность двухчастичной функции распределения.

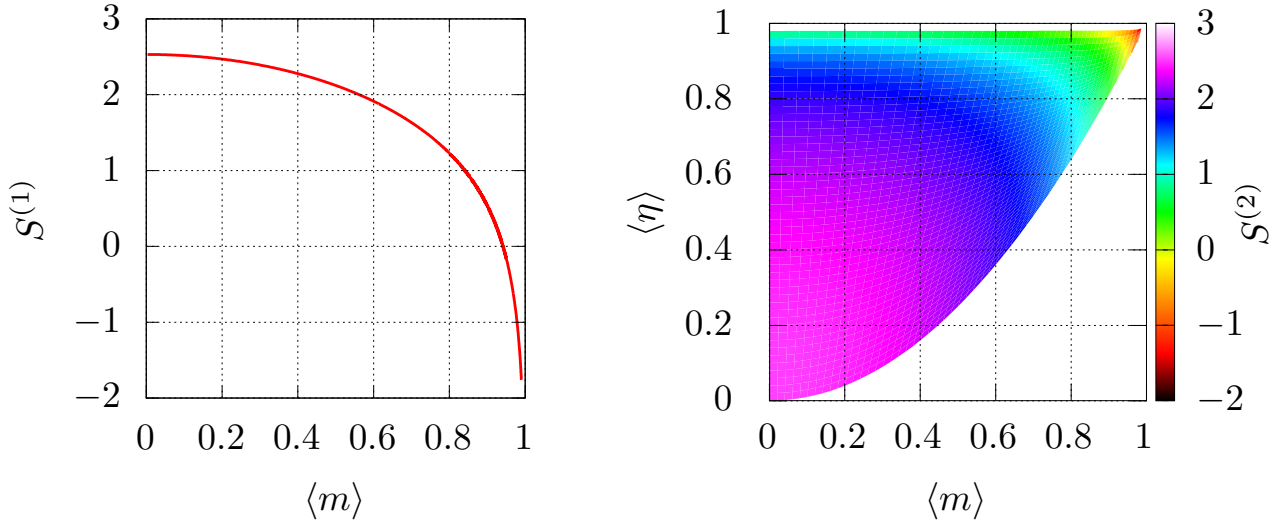


Рис. 2. Зависимости одночастичной $S^{(1)}(\langle m \rangle)$ и двухчастичной $S^{(2)}(\langle m \rangle, \langle \eta \rangle)$ энтропии. Сепаратриса на зависимости $S^{(2)}$ отвечает приближению среднего поля $\langle \eta \rangle = \langle m \rangle^2$. Поскольку рассматриваемая система классическая, $S^{(1,2)} \rightarrow -\infty$ при $T \rightarrow 0$ и $\langle m \rangle \rightarrow 1$

Уровень парных корреляций задается величиной

$$\langle \eta \rangle = \langle \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j \rangle = \iint_{S_2} \mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j f_{ij}^{(2)} d\mathbf{m}_i d\mathbf{m}_j,$$

обменная энергия в расчете на одну частицу равна $-n_b J \langle \eta \rangle / 2$. Аппроксимация (7) выполняется с достаточно высокой точностью в широком диапазоне параметров [13]. Параметры аппроксимации ρ, λ могут быть найдены численно, если записать $\langle m \rangle, \langle \eta \rangle$ как моменты $f^{(2)}$ и трактовать эти выражения как систему из двух интегральных уравнений.

Отвечающая $f^{(2)}$ (7) энтропия имеет вид (рис. 2)

$$S^{(2)} = \frac{\ln Z^{(2)}}{2} - \rho p \langle m \rangle - \frac{\lambda \langle \eta \rangle}{2}, \quad (8)$$

что дает значения, лежащие чуть ближе к $S^{(N)}$, чем значения $S^{(1)}$, рис. 1.

Можно предположить, что по мере увеличения числа частиц n в многочастичной функции распределения $f^{(n)}$ значения соответствующей энтропии $S^{(n)}$ будут все лучше и лучше совпадать со значениями $S^{(N)}$, поскольку $f^{(n)}$ будет содержать больше информации о системе. Однако и построение, и последующее интегрирование функций распределения даже с небольшим числом частиц $n = 3 \div 6$ сопряжено с большими сложностями [14].

Как уже отмечалось выше, при $T \ll J$ выражения (4) и (5) отличаются только множителем n_b во втором слагаемом. Рассмотрим многочастичную функцию распределения специального вида «звезда» и соответствующую ей

энтропию:

$$f^*(\mathbf{m}_0, \dots, \mathbf{m}_{n_b}) = f_0^{(1)} \prod_{i=1}^n \frac{f_{0i}^{(2)}}{f_0^{(1)}}, \quad S^* = S^{(1)} + n_b \left(S^{(2)} - S^{(1)} \right). \quad (9)$$

Сразу отметим, что, хотя f^* зависит от $n_b + 1$ магнитного момента (магнитного момента \mathbf{m}_0 центрального атома и n_b магнитных моментов $\mathbf{m}_{1\dots n_b}$ «лучей»), при вычислении ее энтропии мы **не** нормируем результат на число частиц, а просто суммируем энтропии входящих в f^* младших функций распределения. Деление на $f_0^{(1)}$ необходимо для сохранения нормировки f^* .

Функция распределения f^* обладает следующими свойствами:

1. поскольку «лучи» не взаимодействуют друг с другом, за счет того, что $f_i^{(1)} \approx \int_{S_2} f_{ij}^{(2)} d\mathbf{m}_j$ функция f^* аналитически интегрируема, интеграл по каждому из «лучей» просто убирает «луч»;
2. если добавить (точнее умножить) f^* на какую-то двухчастичную функцию распределения в приближении среднего поля $f_{0k}^{(2)} \approx f_0^{(1)} f_k^{(1)}$ (не забывая делить f^* на $f_0^{(1)}$), то итоговое значение энтропии S^* , **рассчитанное по сформулированным выше правилам**, не изменится;
3. высокотемпературная асимптотика S^* совпадает с высокотемпературной асимптотикой (4) для S ;
4. как будет видно из результатов расчетов, S^* совпадает с S в широком диапазоне значений температуры, поля и анизотропии с точностью не хуже первых процентов.

В f^* учитываются только ближайшие соседи. Изначально была надежда, что аналогичный учет соседей из следующих координационных сфер позволит повысить точность расчета, но эта надежда не оправдалась. Вместо этого было обнаружено, что добавление $f^{(2)}$ (но с противоположным знаком) с атомами из самой дальней координационной сферы, учитываемой в корреляционной магнитодинамике, на порядок увеличивает точность расчета энтропии. Введем функцию распределения f^{**} и ее энтропию:

$$f^{**}(\mathbf{m}_0 \dots \mathbf{m}_{2n_b}) = f_0^{(1)} \prod_{i=1}^{n_b} \frac{f_i^{(1)}}{f_{i+n_b}^{(1)}}, \quad S^{**} = S^{(1)} + n_b \left(S^{(2)} - S_{\text{far}}^{(2)} \right), \quad (10)$$

где индексами $i + n_b$ показаны атомы из дальней координационной сферы, а через $S_{\text{far}}^{(2)}$ обозначена энтропия соответствующих $f^{(2)}$.

Дальние координационные сферы для различных кристаллических решеток показаны на рисунке 3. Речь идет о дальних атомах, которые образуют с центральным атомом 0 и его ближайшим соседом i одну линию — атом k_3 для SC решетки и атомы k_4 для BCC и FCC решеток. Для SC и BCC решеток учет

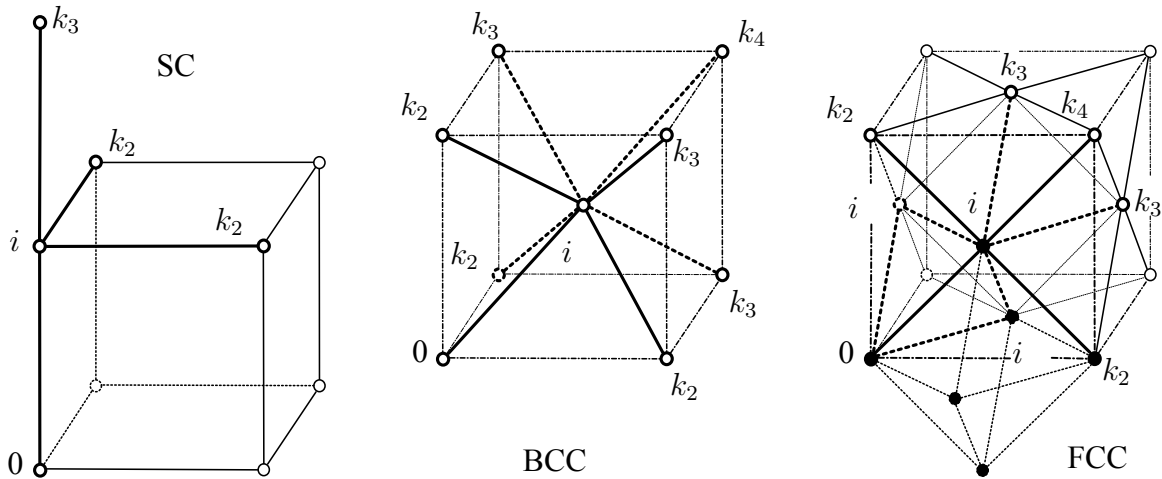


Рис. 3. Примитивная (SC), объемноцентрированная (BCC) и гранецентрированные (FCC) решетки. Индексом j отмечен ближайший сосед атома i , индексами $k_{2...4}$ показана принадлежность атомов к дальним координационным сферам

промежуточных атомов $k_{2,3}$ не требуется — анализ результатов расчетов ASD методом наименьших квадратов показывает, что вклад этих атомов должен учитываться с очень небольшим весом. Для FCC решетки ситуация иная: S^{**} дает значительно лучшее согласие с S , чем S^* , учет промежуточных атомов $k_{2,3}$ позволяет дополнительно увеличить точность. Для FCC решетки итоговое выражение имеет вид

$$S^{***} = S^{(1)} + 12S_1^{(2)} - 24S_2^{(2)} + 24S_3^{(2)} - 12S_4^{(2)}, \quad (11)$$

где индексами показаны координационные сферы. Такое качественное отличие от SC и BCC решеток, видимо, связано с тем, что FCC решетка является значительно более плотной с большим количеством связей.

Дальние двухчастичные функции распределения и их энтропии вычисляются на основе соответствующих дальних значений парных корреляций $\langle \eta^{\text{far}} \rangle$, которые напрямую вычисляются при моделировании ASD. В случае приближения сплошной среды параметры аппроксимации $f^{(2)}$ и значения $S^{(2)}$ для ближайших соседей всегда известны, поскольку известна обменная энергия, но получение параметров аппроксимации $f^{(2)}$ для соседей из следующих координационных сфер является серьезной проблемой. Отчасти пути решения этой проблемы намечены в корреляционной магнетодинамике, но вопрос остается открытым.

Пока что нет строгого аналитического обоснования выражения (9–11), кроме отсылки к высокотемпературным асимптотикам (4) и (5). Скорее всего, речь идет о некотором неизвестном разложении выражения для $S^{(N)}$, первые два члена которого удалось получить из общих соображений. В случае (9–11) еще один–два члена подобраны методом наименьших квадратов при анализе результатов ASD.

4. Результаты расчета энтропии

Мы будем рассматривать фрагмент кристалла размерами $N_m = 32^3$ ячейки с периодическими граничными условиями и тремя вариантами кристаллической решетки. Начальные условия: однородная намагниченность вдоль оси z , внешнее поле и анизотропия отсутствуют. Время моделирования в зависимости от температуры подбирается таким образом, чтобы система заведомо успела прийти в состояние равновесия с термостатом. Для увеличения точности после прихода в состояние равновесия производится накопление статистики в течение 10 безразмерных единиц по времени. В безразмерной системе единиц параметр затухания $\alpha = 0.1$, гиромангнитное отношение $\gamma = 1$, обменный интеграл $J = 1$. Шаг по времени $\delta t = 10^{-2}$ при $T \leq T_{\text{high}}$ и $\delta t = 10^{-3}$ при $T > T_{\text{high}}$, для SC и BCC решеток $T_{\text{high}} = 4$, для FCC решетки $T_{\text{high}} = 8$. Уменьшение шага связано с необходимостью обеспечить низкий уровень ошибки при больших значениях температуры. Расчеты проводились при помощи кода StatASD [15] под управлением RACS (Results and Algorithms Control System) [16, 17].

Для каждой кристаллической решетки рассматривалось четыре постановки со следующими параметрами:

постановка	ОО	НО	ОК	НК
параметр H^{ext}	0	1	0	1
параметр K	0	0	0.5	0.5

Выбор столь больших значений внешнего поля и анизотропии (недостижимых экспериментально и не существующих в природе) обусловлен желанием рассмотреть широкий диапазон параметров.

На рисунке 4 приведены зависимости намагниченности $\langle m \rangle(T)$ и энергии $W(T)$ для всех рассматриваемых кристаллических решеток и всех постановок. Видно, что включение сильной анизотропии сдвигает точку фазового перехода вправо, включение сильного внешнего поля ожидаемо «растягивает» фазовый переход.

На рисунке 5 приведены зависимости от температуры T энтропии S и отношения парных корреляций $\langle \eta^{\text{far}} \rangle / \langle \eta \rangle$ самой дальней и ближней координационных сфер. Видно, что поведение парных корреляций имеет достаточно сложный характер — при малых температурах $\langle \eta^{\text{far}} \rangle$ незначительно отличается от $\langle \eta \rangle$, но в парамагнитной фазе по мере роста температуры $\langle \eta^{\text{far}} \rangle$ спадает значительно быстрее, чем $\langle \eta \rangle$.

На рисунке 6 приведены зависимости ошибок S^* и S^{**} . Видно, что в ферромагнитной фазе в отсутствие внешнего поля и анизотропии (постановка ОО) абсолютная ошибка S^* для SC и BCC решеток составляет порядка 0.05, расчет до 0.1 по мере приближении к фазовому переходу, а затем быстро падает по мере роста температуры. Для FCC решетки аналогичная ошибка S^* ниже фазового перехода составляет порядка 0.1 — как уже отмечалось выше, FCC решетка

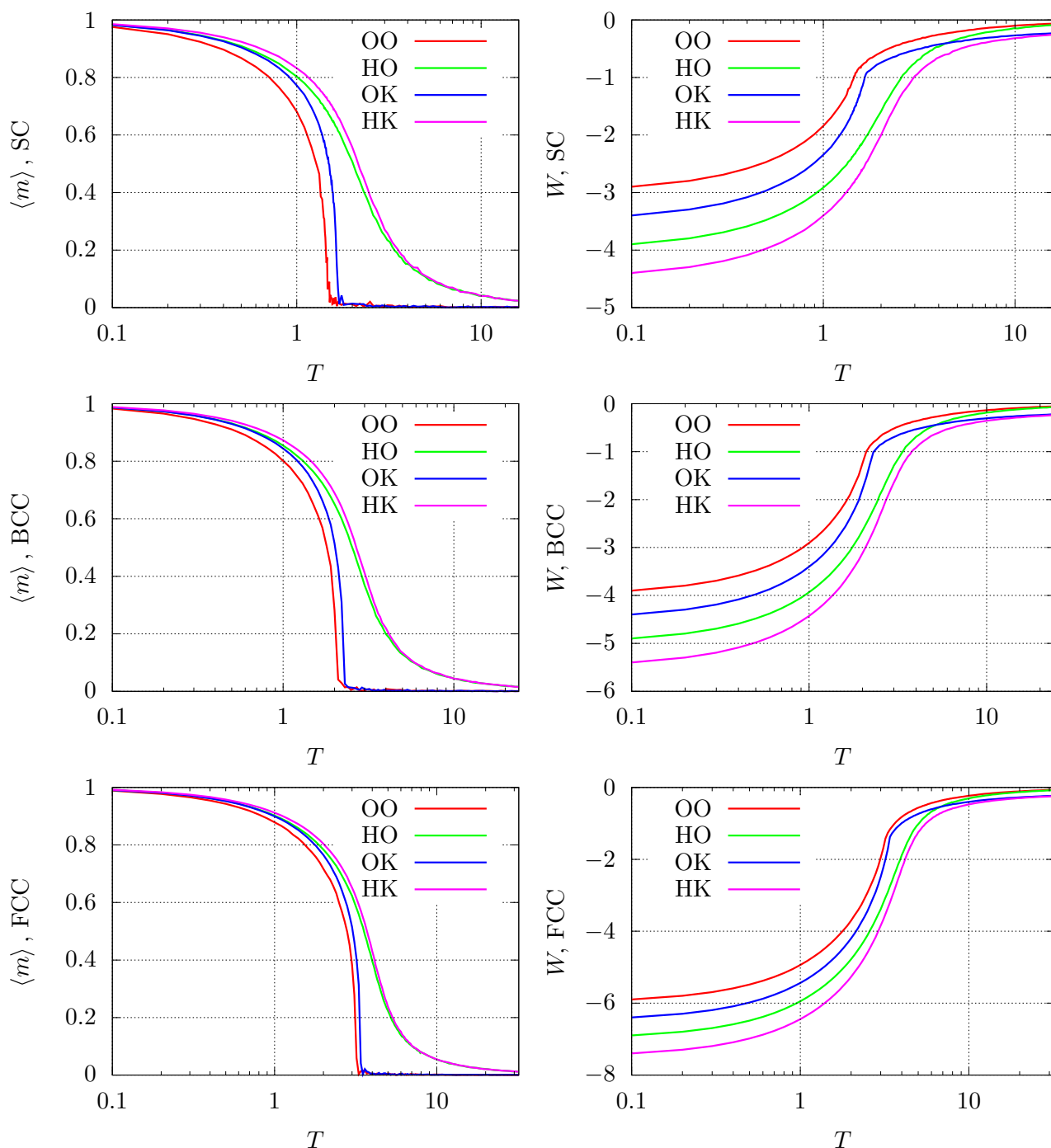


Рис. 4. Зависимости намагниченности $\langle m \rangle$ и энергии W от температуры T для разных кристаллических решеток (SC, BCC, FCC) при разных комбинациях внешнего поля и анизотропии. Включение сильной анизотропии сдвигает точку фазового перехода вправо, включение сильного внешнего поля ожидаемо «растягивает» фазовый переход

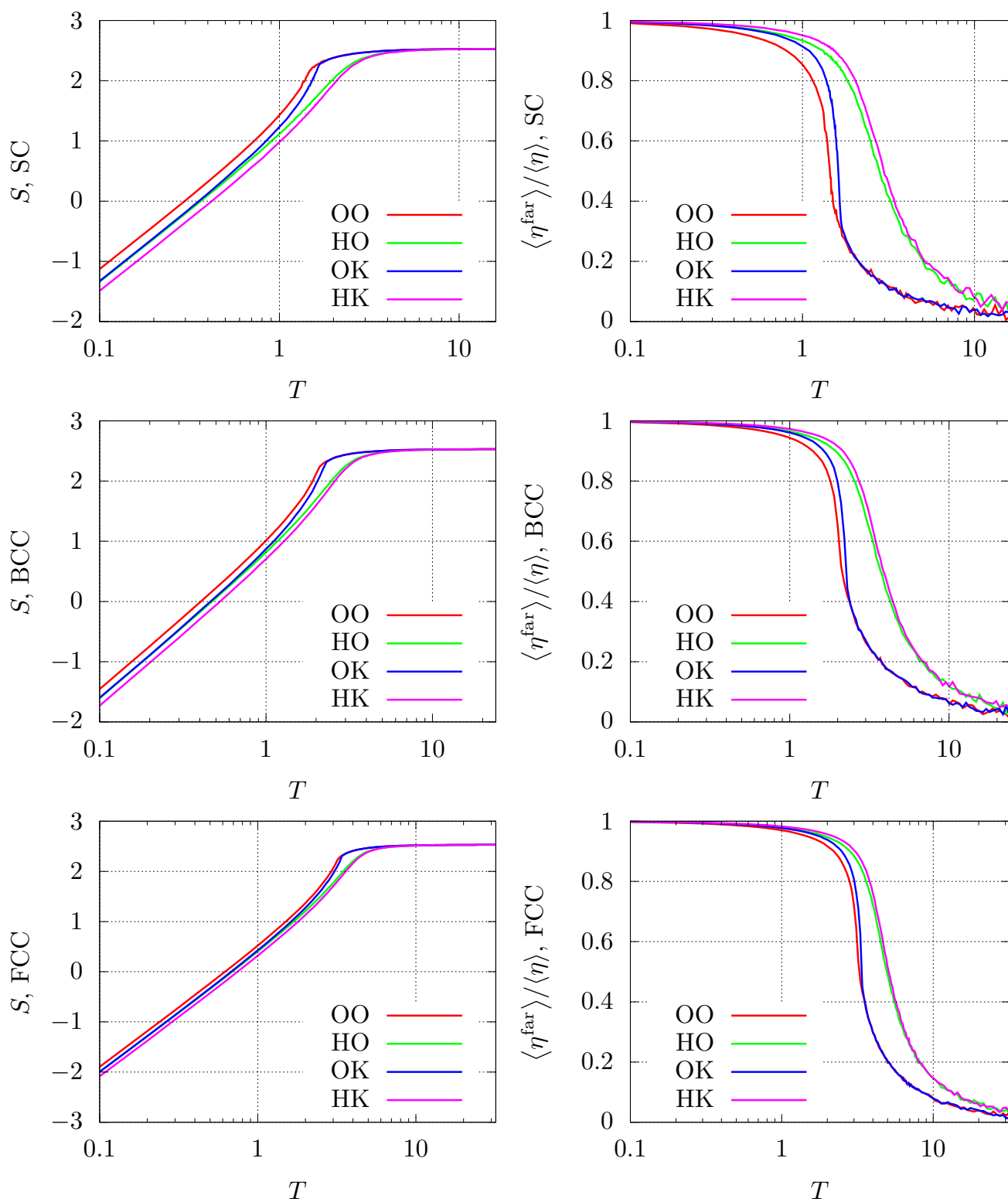


Рис. 5. Зависимости энтропии S и отношения парных корреляций самой дальней $\langle \eta^{\text{far}} \rangle$ и самой ближней $\langle \eta \rangle$ координационных сфер от температуры T для разных кристаллических решеток (SC, BCC, FCC) при разных комбинациях внешнего поля и анизотропии. Поведение парных корреляций имеет достаточно сложный характер — при малых температурах $\langle \eta^{\text{far}} \rangle$ незначительно отличается от $\langle \eta \rangle$, но в парамагнитной фазе по мере роста температуры $\langle \eta^{\text{far}} \rangle$ спадает значительно быстрее, чем $\langle \eta \rangle$

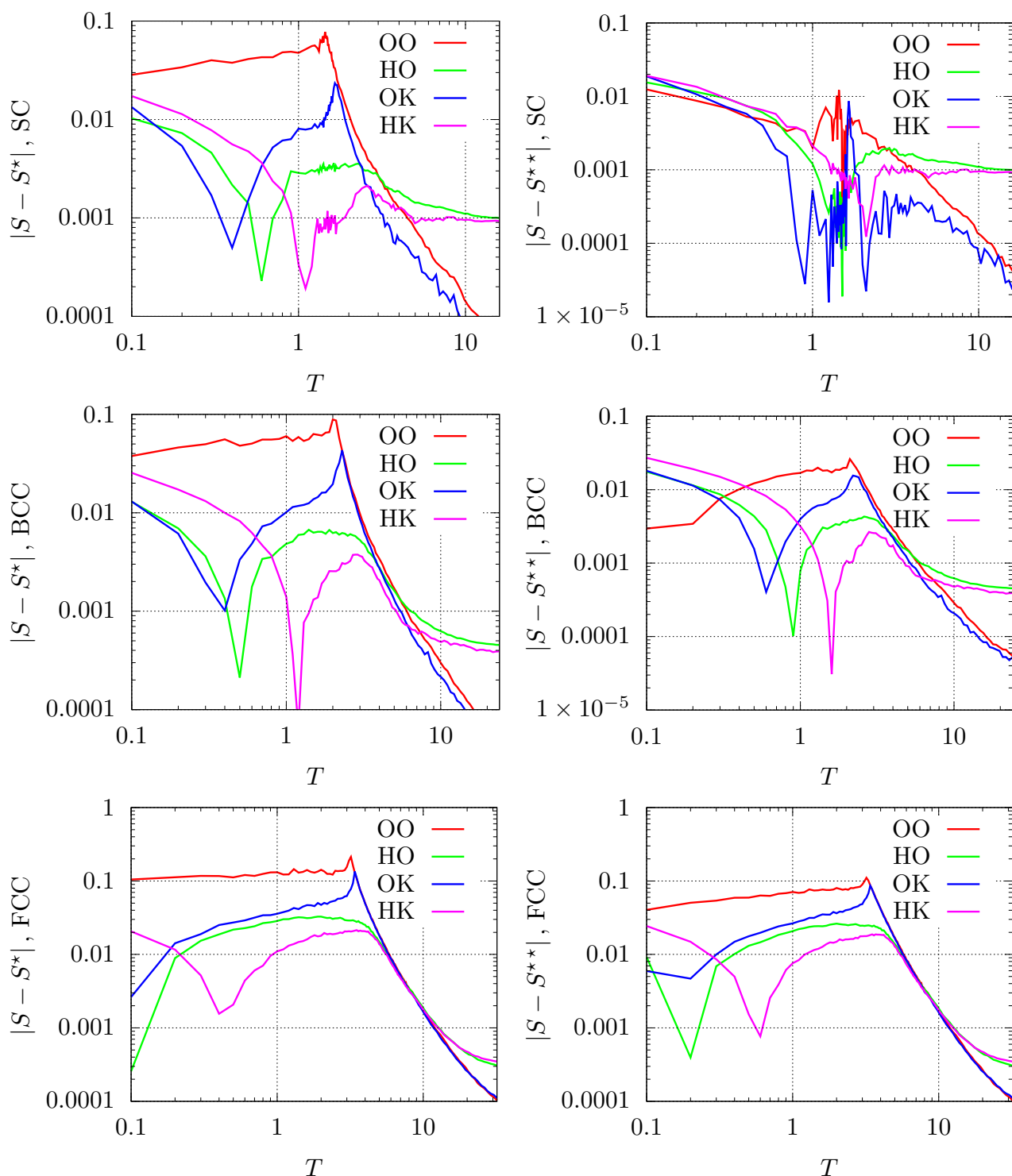


Рис. 6. Зависимости абсолютной ошибки расчета энтропии на основе многочастичной функции распределения «звезда» от температуры T для разных кристаллических решеток (SC, BCC, FCC) при разных комбинациях внешнего поля и анизотропии. Энтропия S^* рассчитывается только на основе ближайших соседей, S^{**} рассчитывается на основе ближайших соседей и соседей из дальней координационной сферы. Учет вклада дальней координационной сферы в S^* позволяет почти на порядок уменьшить ошибку для SC и BCC решеток в постановке OO

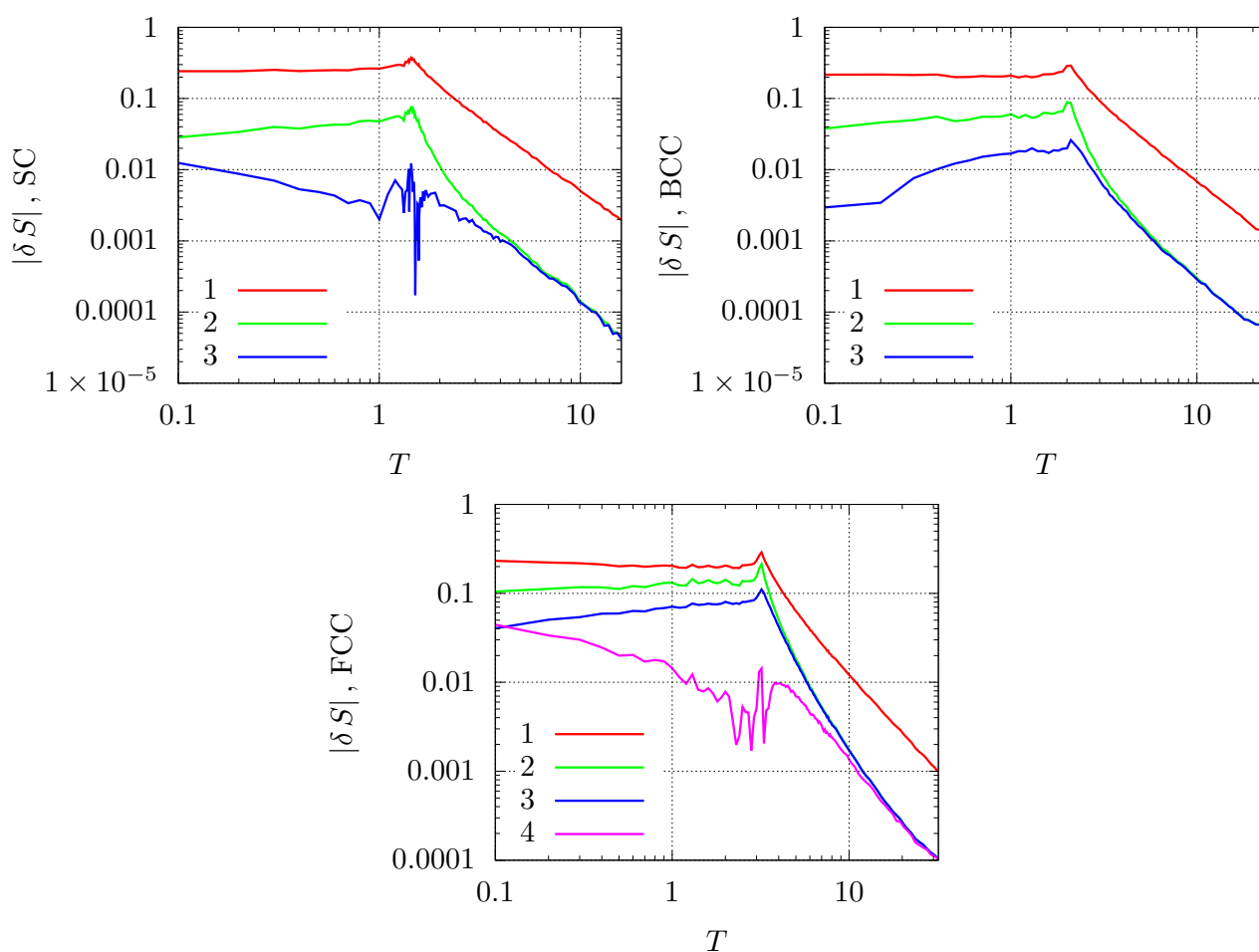


Рис. 7. Зависимости абсолютной ошибки различных вариантов расчета энтропии $|\delta S|$ для разных кристаллических решеток (SC, BCC, FCC) при нулевых внешнем поле и анизотропии (постановка ОО): 1 — ошибка $S^{(1)}$, 2 — ошибка S^* (только ближайшие соседи), 3 — ошибка S^{**} (ближайшие соседи и соседи из дальней координационно сферы), 4 — соседи из всех координационных сфер, вовлеченные в расчет трехчастичных функций распределения. Для SC и BCC решеток вариант 4 не приведен, так как он не увеличивает точность расчета

имеет более плотную структуру с большим числом связей. Включение сильного внешнего поля и/или анизотропии резко уменьшает ошибку S^* , поскольку система оказывается ближе к приближению среднего поля, которое проще и точнее описывается двухчастичными функциями распределения.

Учет вклада дальней координационной сферы в S^* позволяет почти на порядок уменьшить ошибку для SC и BCC решеток в постановке ОО и в разы уменьшить ошибку для всех решеток в постановке ОК (включенная анизотропия без внешнего поля). В случае включенного поля ситуация практически не меняется, но в этом случае ошибка и так достаточно мала — порядка $3 \cdot 10^{-3}$ для SC и BCC решеток и $3 \cdot 10^{-2}$ для FCC решетки.

На рисунке 7 приведены ошибки для всех вариантов расчета энтропии в наиболее интересной постановке ОО. Видно, что для SC и BCC расчет S^{**}

на два порядка точнее по сравнению с тем, что дает простейший учет одночастичной энтропии $S^{(1)}$, для FCC решетки выигрыш составляет один порядок. Учет вкладов от промежуточных координационных сфер для FCC решетки позволяет поднять точность еще на один порядок при $T > 1^\dagger$. В итоге для всех кристаллических решеток в актуальном диапазоне температур удастся снизить абсолютную ошибку до уровня 10^{-2} , что отвечает относительной ошибке в доли процента.

5. Минимизация свободной энергии

Аппроксимация энтропии (9) позволяет получить свободную энергию

$$F(\langle m \rangle, \langle \eta \rangle) = W - TS^*,$$

минимизация которой позволяет находить стационарные состояния системы

$$\langle m \rangle_{\text{eq}}, \langle \eta \rangle_{\text{eq}} = \arg \min F.$$

Более точные выражения для энтропии S^{**} и S^{***} для минимизации свободной энергии недоступны, потому что в общем случае неизвестны уровни парных корреляций $\langle \eta^{\text{far}} \rangle$ с соседями из дальних координационных сфер.

В отличие от уравнения Ландау–Лифшица–Блоха, описывающего состояние физически бесконечно малого объема только при помощи намагниченности $\langle \mathbf{m} \rangle$ (параметра дальнего порядка), корреляционная магнетодинамика дополнительно вводит в качестве параметра уровень парных корреляций $\langle \eta \rangle$ (параметр ближнего порядка). Полученная система координат $\langle m \rangle, \langle \eta \rangle$ оказывается криволинейной, поскольку приближение среднего поля отвечает параболе $\langle \eta \rangle = \langle m \rangle^2$, рис. 2. Вместо параметра $\langle \eta \rangle$ в некоторых случаях удобно ввести параметр $\zeta = (\langle \eta \rangle - \langle m \rangle^2) / (1 - \langle m \rangle^2)$, в таких координатах ферромагнитная фаза в постановке ОО выглядит почти горизонтальной прямой [12].

На рисунке 8 приведены зависимости $\zeta(\langle m \rangle)$ (фазовые портреты) для всех рассмотренных постановок. Видно, что качественно результаты близки, но количественные отличия достаточно существенны и могут превышать 50% для FCC решетки в постановке ОО. Ошибки связаны с ошибками аппроксимации энтропии — параметр ζ очень чувствителен и в постановке ОО показывает, насколько далеко отстоит решение от приближения среднего поля ($\zeta = 0$). Зависимости $\langle m \rangle(T)$ и $W(T)$ совпадают гораздо лучше (рис. 9, 10, 11) — ошибки в расчете энтропии проявляются только в некотором сдвиге критической температуры для постановок ОО и ОК (без внешнего поля).

[†]Надо отметить, что с практической точки зрения модель ASD адекватна при температурах $T \geq T_c/2$, где T_c — критическая температура. При меньших температурах в магнетике существенную роль играют квантовые эффекты, связанные с магнонами. ASD за счет вида случайного источника является классической моделью и эти эффекты не учитывает [18]

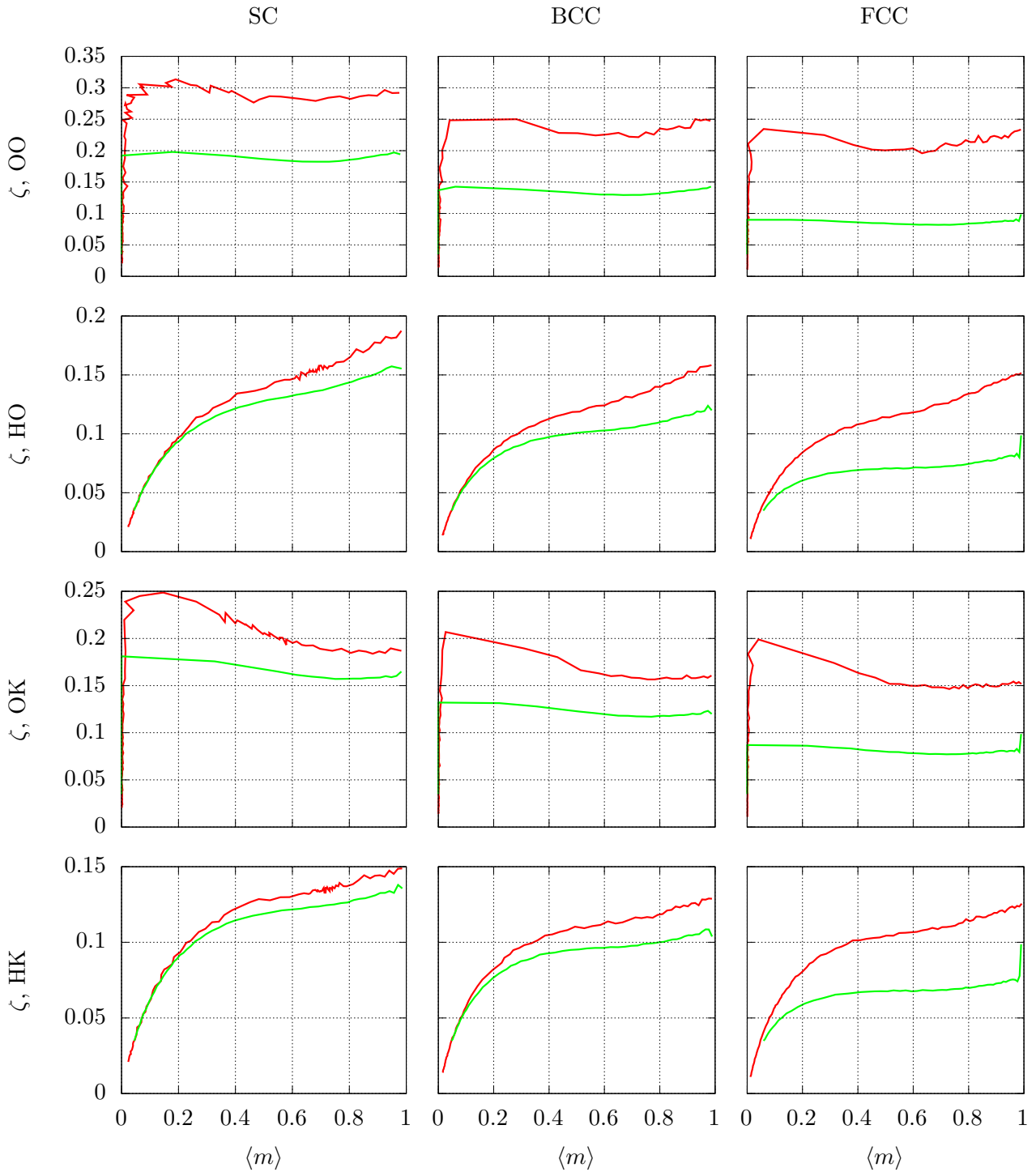


Рис. 8. Сравнение фазовых портретов — равновесных зависимостей $\zeta(\langle m \rangle)$, полученных из моделирования ASD (красная линия) и из минимизации свободной энергии (зеленая линия) на основе S^* при разных комбинациях внешнего поля и анизотропии для различных кристаллических решеток

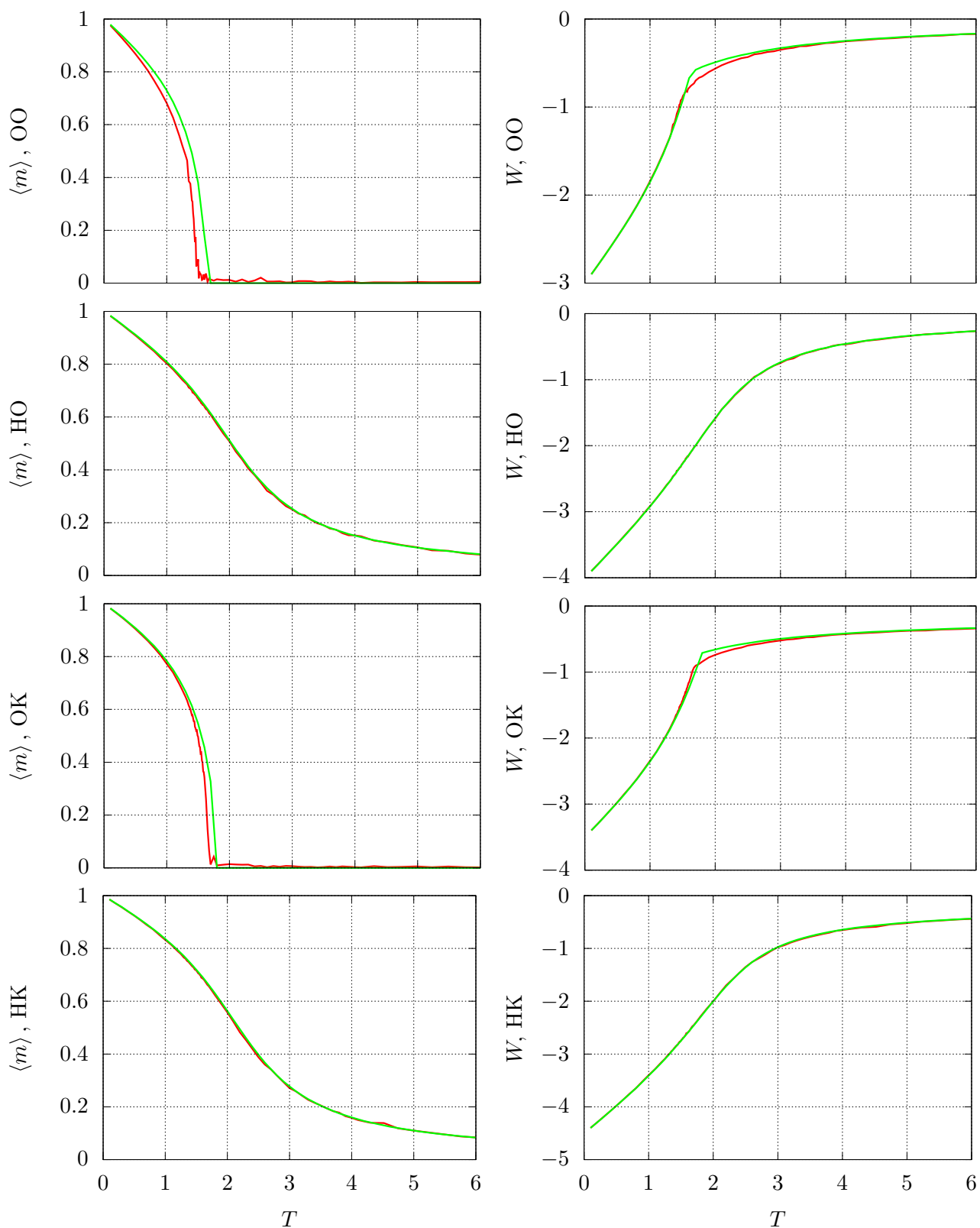


Рис. 9. Сравнение равновесных зависимостей намагниченности и энергии, полученных из моделирования ASD (красная линия) и из минимизации свободной энергии (зеленая линия) на основе S^* при разных комбинациях внешнего поля и анизотропии для решетки SC

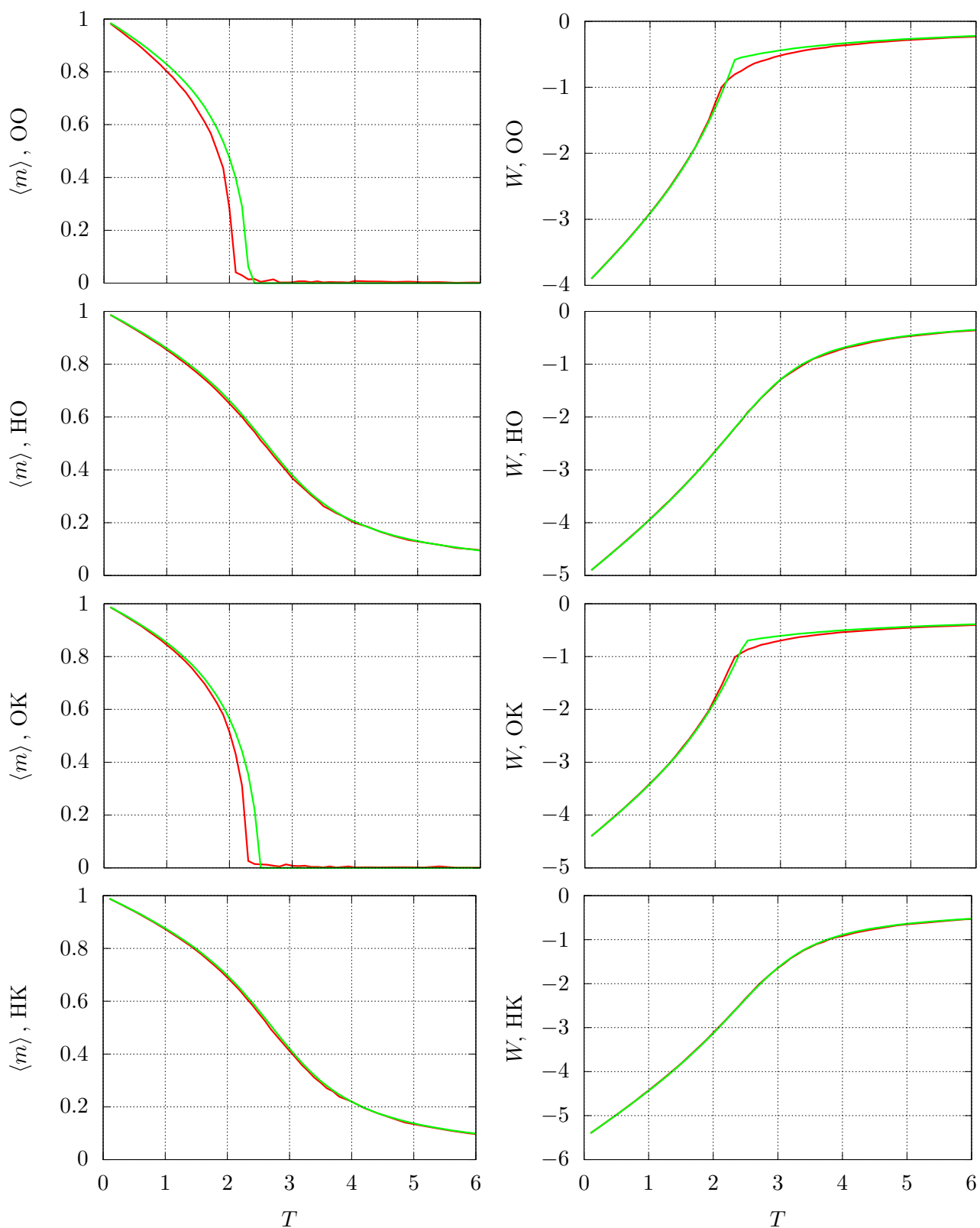


Рис. 10. Сравнение равновесных зависимостей намагниченности и энергии, полученных из моделирования ASD (красная линия) и из минимизации свободной энергии (зеленая линия) на основе S^* при разных комбинациях внешнего поля и анизотропии для решетки BCC

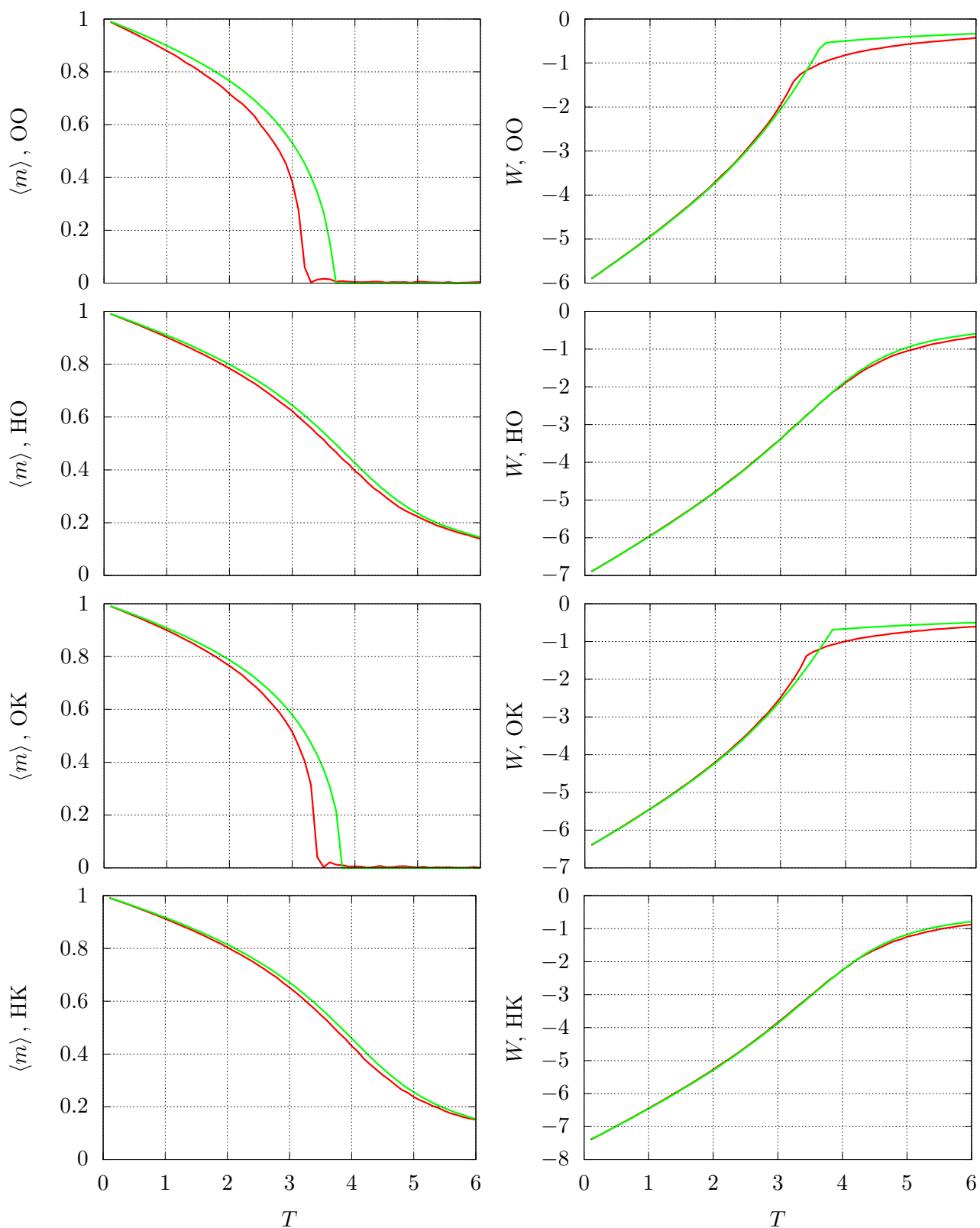


Рис. 11. Сравнение равновесных зависимостей намагниченности и энергии, полученных из моделирования ASD (красная линия) и из минимизации свободной энергии (зеленая линия) на основе S^* при разных комбинациях внешнего поля и анизотропии для решетки FCC

6. Заключение

Приведенный в работе метод расчета энтропии приближенный и не имеет строгого обоснования, не считая высокотемпературной асимптотики. Метод может рассматриваться как некоторое разложение, каждый следующий член которого учитывает дополнительную информацию об атомах из дальних координационных сфер, что позволяет повышать точность. Ключевой особенностью метода является применение только одно- и двухчастичных функций распределения, что минимизирует его вычислительную сложность.

Работоспособность метода продемонстрирована в большой серии вычислительных экспериментов для трех типов кристаллической решетки (примитивной, объемноцентрированной и гранецентрированной) в широком диапазоне параметров. В актуальном диапазоне температур при учете только первой координационной сферы расчеты энтропии имеют точность порядка одного процента для примитивной и объемноцентрированной решеток и нескольких процентов для гранецентрированной решетки. Учет вкладов дальних координационных сфер позволяет повысить точность на порядок, но расчет этих вкладов пока что доступен только при прямом моделировании магнетика «атом-в-атом» (ASD).

Автор выражает глубокую благодарность Евгению Савенкову (ИПМ им. М.В. Келдыша РАН) за многочисленные обсуждения вопросов вычисления и применения энтропии.

Список литературы

- [1] Захаров А.Ю. Решёточные модели статистической физики. — Великий Новгород, 2006. — С. 74. — https://eqworld.ipmnet.ru/ru/library/books/Zaharov_rm_2006ru.pdf.
- [2] Фазовые переходы и магнитные свойства модели Поттса с числом состояний спина $q=4$ на гексагональной решетке в слабых магнитных полях / М.К. Рамазанов, А.К. Муртазаев, М.А. Магомедов, М.К. Мазагаева // **Письма в ЖЭТФ**. — 2021. — Т. 114, № 11. — С. 762–767.
- [3] Иванов А.В. Расчет статистической суммы и аппроксимация многочастичных функций распределения для магнетиков в модели Гейзенберга // Препринты ИПМ им. М.В. Келдыша. — 2019. — № 104. — С. 12. — <https://doi.org/10.20948/prepr-2019-104>.
- [4] Муртазаев А.К., Курбанова Д.Р., Рамазанов М.К. Фазовые переходы и критические свойства антиферромагнитной модели Гейзенберга на объемноцентрированной кубической решетке с взаимодействиями вторых ближайших соседей // **ЖЭТФ**. — 2019. — Т. 156, № 5. — С. 980–988.

- [5] Atomistic spin dynamics: foundations and applications / Olle Eriksson, Anders Bergman, Lars Bergqvist, Johan Hellsvik. — Oxford university press, 2017.
- [6] Garanin D.A. Fokker–Planck and Landau–Lifshitz–Bloch equations for classical ferromagnets // *Phys. Rev. B.* — 1997. — Vol. 55. — P. 3050. — <https://arxiv.org/abs/cond-mat/9805054v2>.
- [7] Atxitia U., Hinzke D., Nowak U. Fundamentals and applications of the Landau–Lifshitz–Bloch equation // *J. Phys. D. Appl. Phys.* — 2016. — Vol. 50.
- [8] Иванов А.В. Аппроксимация коэффициентов уравнения Ландау–Лифшица–Блоха при микромагнитном моделировании // *Препринты ИПМ им. М.В. Келдыша.* — 2019. — № 105. — С. 16. — <https://doi.org/10.20948/prepr-2019-105>.
- [9] Иванов А.В. Учет корреляций между ближайшими соседями при микромагнитном моделировании // *Препринты ИПМ им. М.В. Келдыша.* — 2019. — № 118. — С. 30. — <https://doi.org/10.20948/prepr-2019-118>.
- [10] Иванов А.В., Зипунова Е.В., Хилков С.А. Уравнения корреляционной магнитодинамики для ферромагнетиков // *Письма в ЖЭТФ.* — 2022. — Т. 115, № 3. — С. 176–183. — <https://doi.org/10.31857/S1234567822030077>.
- [11] Ivanov A.V., Zipunova E.V., Khilkov S.A. Calculation of Integral Coefficients for Correlation Magnetodynamics and Verification of the Theory // In: Voevodin, V., Sobolev, S. (eds) *Supercomputing. RuSCDays 2021. Communications in Computer and Information Science.* — 2021. — Vol. 1510. — P. 29–43. — https://doi.org/10.1007/978-3-030-92864-3_3.
- [12] Иванов А.В., Лукьянов А. В., Замятин С.В. Простейшая аппроксимация интегральных коэффициентов в уравнениях корреляционной магнитодинамики для ферромагнетиков // *Препринты ИПМ им. М.В. Келдыша.* — 2024. — № 47. — С. 22. — <https://doi.org/10.20948/prepr-2024-47>.
- [13] Замятин С.В., Лукьянов А.В., Иванов А.В. О точности аппроксимации двухчастичной функции распределения для ферромагнетика // *Препринты ИПМ им. М.В. Келдыша.* — 2024. — № 20. — С. 31. — <https://doi.org/10.20948/prepr-2024-20>.
- [14] Иванов А.В. Аппроксимация многочастичных функций распределения для ферромагнетиков с различными кристаллическими решетками // *Препринты ИПМ им. М.В. Келдыша.* — 2021. — № 11. — С. 22. — <https://doi.org/10.20948/prepr-2021-11>.

- [15] Ivanov A.V. StatASD — Modeling Atomistic Spin Dynamics for Statistical Physics. — 2024. — <https://github.com/aivn/StatASD>.
- [16] Иванов А.В. Использование библиотеки aiwlib на примере численного моделирования стохастического резонанса // Препринты ИПМ им. М.В. Келдыша. — 2018. — № 89. — С. 30. — <https://doi.org/10.20948/prepr-2018-89>.
- [17] Иванов А.В., Хилков С.А. Библиотека aiwlib — инструмент для создания приложений численного моделирования, визуализации и анализа результатов // Научная визуализация. — 2018. — Т. 10, № 1. — С. 110–127. — <https://doi.org/10.26583/sv.10.1.09>.
- [18] Лукьянов А.В., Иванов А.В. Численное моделирование магнетиков «атом-в-атом», закон Блоха $3/2$ и третье начало термодинамики // Препринты ИПМ им. М.В. Келдыша. — 2023. — № 33. — С. 14. — <https://doi.org/10.20948/prepr-2023-33>.