

# Simulaciones de Monte Carlo de compuestos ternarios\*

Javier E. Villarroel y Gloria M. Buendía\*\*

Departamento de Física, Universidad Simón Bolívar, Caracas 1080, Venezuela

Recibido: 30-11-05      Aceptado: 10-04-06

## Resumen

En este trabajo se presenta un estudio de Monte Carlo de modelos mixtos de Ising, con el objetivo de simular el comportamiento magnético de compuestos ternarios moleculares análogos al azul de Prusia, caracterizados por altas temperaturas críticas y por presentar puntos de compensación. El modelo a estudiar consiste en una red cuadrada compuesta por dos subredes entrelazadas, una subred posee espines  $S_A=3/2$ , y la otra espines  $S_B=5/2$  y  $S_C=1$  en concentraciones variables. Las interacciones entre primeros vecinos son ferromagnéticas para  $S_A-S_B$  y antiferromagnéticas para  $S_A-S_C$ . Se calcula la magnetización del sistema para distintas concentraciones de espines  $S_B$  y  $S_C$ , y diferentes valores de los parámetros de acoplamiento. Los resultados indican que este modelo simple puede reproducir cualitativamente varias de las características de los compuestos experimentales, en particular la existencia de una temperatura crítica independiente de la concentración de espines de uno y otro tipo, y la aparición de temperaturas de compensación en cierto rango de valores de estas concentraciones.

**Palabras clave:** Compuestos ternarios; ferrimagnéticos; ising.

## Monte Carlo simulations of ternary compounds

### Abstract

In this work we present a Monte Carlo study of a mixed Ising model with the purpose of simulating the magnetic behavior of a type of ternary molecular compounds called prussian blue analogs, characterized for having high critical temperatures and compensation temperatures. The model is a square lattice composed by two alternating sublattices, one sublattice has spins  $S_A=3/2$  and the other spins  $S_B=5/2$  or  $S_C=1$ , in different concentrations. The interaction between nearest-neighbors is ferromagnetic in the case of  $S_A-S_B$  spins, and antiferromagnetic for  $S_A-S_C$  spins. We calculate magnetizations for systems with different concentrations of  $S_B$  and  $S_C$ , and different coupling parameters. The results indicate that this simple system can reproduce several qualitative properties of the experimental compounds, in particular the existence of a critical temperature that is independent of the concentration of the different types of spins, and the presence of compensation temperatures in certain range of values of the concentrations.

**Key words:** Ferrimagnets; ising; ternary compounds.

\* Trabajo presentado en el V Congreso de la Sociedad Venezolana de Física, Universidad del Zulia. Nucleo Punto Fijo - Edo. Falcón, Venezuela, Noviembre 2005.

\*\* Autor para la correspondencia. E-mail: buendia@usb.ve

## Introducción

En la actualidad existe una gran actividad experimental orientada al diseño y síntesis de compuestos moleculares ternarios que combinan interacciones ferro- y antiferromagnéticas. Un ejemplo de estos compuestos son los llamados análogos al azul de Prusia (1,2). Estos materiales tienen novedosas propiedades magnéticas tales como: inversión de polos magnéticos, presencia de temperaturas de compensación ( $T_{\text{comp}}$ ), temperaturas críticas ( $T_{\text{crit}}$ ) relativamente altas, y magnetizaciones inducidas ópticamente (3), que los hacen candidatos ideales para múltiples aplicaciones tecnológicas (4). Uno de los grandes atractivos de estos materiales está en que sus propiedades se pueden modificar simplemente alterando las concentraciones de los componentes con interacciones ferro-magnéticas y antiferromagnéticas.

En este trabajo se trata de estudiar algunas propiedades magnéticas de compuestos similares al azul de Prusia cuya estequiometría es  $(\text{Ni}_p^{II} \text{Mn}_{1-p}^{III})_{1.5} [\text{Cr}^{III}(\text{CN})_6]_z \cdot x\text{H}_2\text{O}$ . En este compuesto el ion de  $\text{Cr}^{III}$  posee tres espines no apareados ( $S_{\text{crit}}=3/2$ ). El ion de Ni posee dos espines no apareados ( $S_{\text{Ni}}=1$ ), y el de Mn posee 5 espines no apareados ( $S_{\text{Mn}}=5/2$ ). El acoplamiento entre Cr y Ni es ferromagnético y entre Mn y Cr es antiferromagnético (5,6). Simularemos mediante un algoritmo de Monte Carlo (MC), un sistema ternario de espines mixtos de Ising,  $\text{AB}_p\text{C}_{1-p}$ , donde A, B y C representan a los átomos de Cr, Ni y Mn respectivamente, P es la concentración relativa de átomos B y C en el compuesto (7). Modelos mixtos de Ising se han utilizado con éxito para estudiar cualitativamente el comportamiento de sistemas magnéticos complejos (8-10).

## Modelo

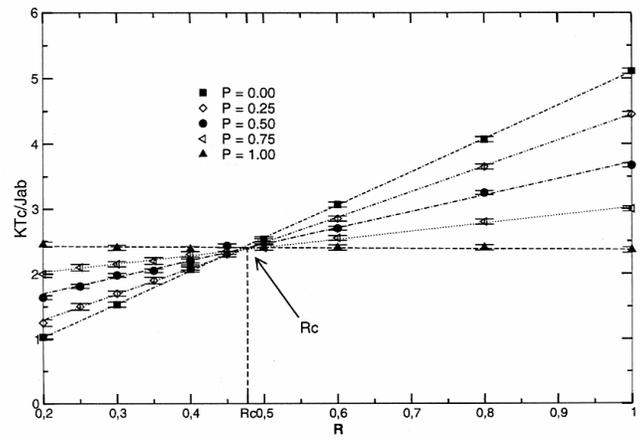
El modelo consiste en una red cuadrada de espines acoplados, compuesta por dos subredes alternadas. La primera subred posee espines  $S_A$  que pueden tomar 4 valores,  $\pm 3/2, \pm 1/2$ . Los sitios de la segunda subred

están ocupados por espines  $S_B$  que pueden tomar 3 valores,  $\pm 1, 0$  o por espines  $S_C$  que pueden tomar 6 valores,  $\pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2$ , de acuerdo con una distribución aleatoria que describiremos más adelante. Los vecinos cercanos de una subred son espines de la otra subred y viceversa. El hamiltoniano es de la forma:

$$H = -J_{AB} \sum_{\langle nn \rangle} S_{Ai} S_{Bj} \varepsilon_{Ai} \varepsilon_{Bj} - J_{AC} \sum_{\langle nn \rangle} S_{Ai} S_{Ck} \varepsilon_{Ai} \varepsilon_{Ck} - J_{AA} \sum_{\langle nn \rangle} S_{Ai} S_{Al} \varepsilon_{Ai} \varepsilon_{Al} \quad [1]$$

donde  $J_{AB}, J_{AC}, J_{AA}$  son los parámetros de acoplamiento entre los espines A-B (primeros vecinos), A-C (primeros vecinos), y A-A (segundos vecinos), respectivamente. Escogemos  $J_{AB} > 0$ , para simular una interacción ferromagnética entre los espines A-B, y  $J_{AC} < 0$  para simular una interacción antiferromagnética entre los espines A-C, tal como corresponde a los modelos experimentales estudiados. El parámetro  $\varepsilon_{Xi}$  vale 1 si en el sitio  $i$  hay un espín del tipo X (A, B ó C), en caso contrario vale cero. Este sistema es simulado en una red de tamaño  $N=L \times L$ , con  $L=60$ , mediante un algoritmo de Monte Carlo tipo baño térmico (7-8). La fracción de espines B en la segunda subred está dada por  $P=N_B/(N_B+N_C)$ , donde  $N_x$  es el número de sitios ocupados por los espines de tipo x,  $N_A=N/2, N_B+N_C=N/2$ . La fracción de espines C en la red es  $1-P$ . Si  $P=0$  solo hay espines A y C intercalados;  $P=1$  solo hay espines A y B intercalados. Cuando  $P < 0,1$  la red consiste en espines A intercalados con espines B y C. Una vez hecha la distribución aleatoria de espines de tipo B y C para cada valor de P, el número y la posición de cada tipo de espín permanece fijo.

Las características de las simulaciones realizadas son: condiciones de borde periódicas, 10000 pasos de calentamiento, las medidas son el resultado de 30000 pasos de MC. Cuando  $P < 0,1$ , las mediciones se toman del promedio de 10 simulaciones cuyas distribuciones iniciales de espines B ( $N_B=NP/2$ )



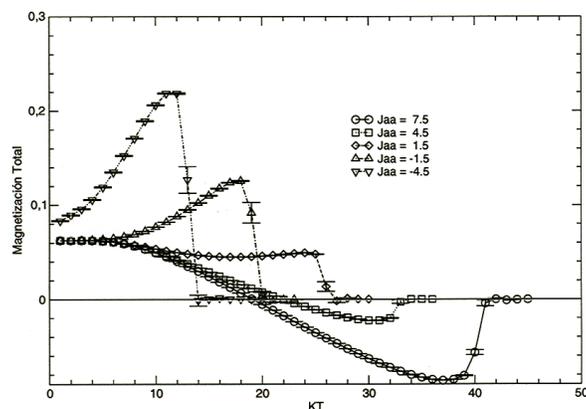


Figura 2. Magnetización total por espín para distintos valores de  $J_{AA}$ ,  $J_{AB} = -J_{AC} = 5$ ,  $P = 0,25$ . Note que aparecen puntos de compensación cuando  $J_{AA} = 7,5$  y  $4,5$ .

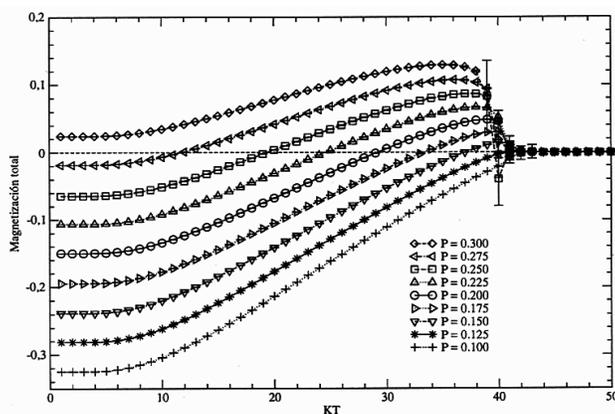


Figura 3. Magnetización total por espín para distintos valores de  $P$ .  $J_{AA} = 7,5$ ,  $J_{AB} = -J_{AC} = 5$ . En el rango,  $0,125 < P < 0,3$ , el sistema tiene temperatura de compensación.

Para entender el mecanismo que da origen a la aparición de  $T_{comp}$ , en la Figura 4 mostramos, para distintos  $P$ , el comportamiento de la magnetización de las subredes acopladas antiferromagnéticamente. El punto de compensación aparece cuando los valores absolutos de las subredes son iguales, dando lugar en ese punto a una magnetización cero.

### Conclusiones

En este trabajo se estudió mediante simulaciones de Monte Carlo el comportamiento magnético de un modelo mixto de

Ising de un compuesto ternario del tipo  $AB_P C_{1-P}$  donde los espines de los iones de tipo A toman los valores  $\pm 3/2, \pm 1/2$ , los de tipo B  $\pm 1, 0$ , y los C  $\pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2$ . Los A interactúan ferromagnéticamente con los B y antiferromagnéticamente con los C.  $P$  es la concentración de espines B, y  $1-P$  la de C. Este modelo es relevante para la comprensión de compuestos ferrimagnéticos ternarios, análogos a los azules de Prusia, que tienen interesantes propiedades magnéticas como  $T_{comp}$  y altas  $T_{crit}$ . Encontramos que para ciertas combinaciones de los parámetros del hamiltoniano existe un rango de valores de  $P$  para

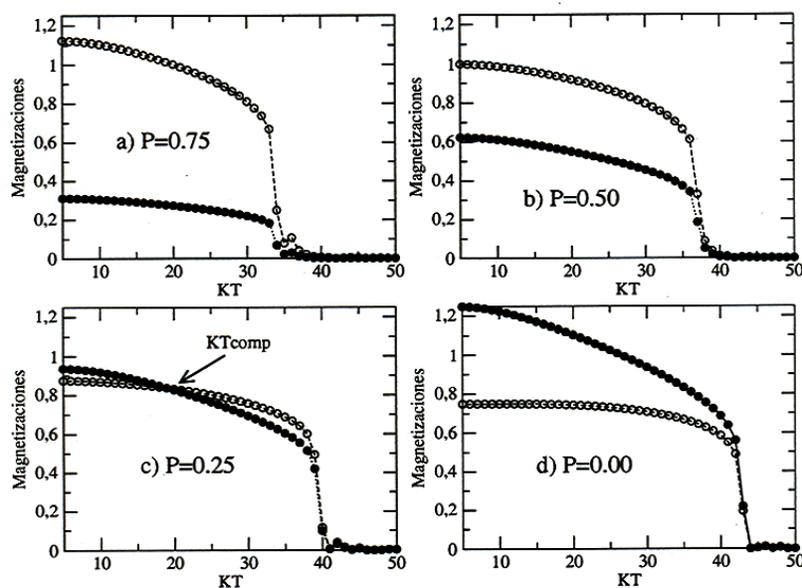


Figura 4. Valores absolutos de la magnetización de las subredes acopladas antiferromagnéticamente para distintos valores de  $P$ . Los círculos vacíos representan a la subred positiva,  $m_+ = (m_A + P m_B)/2$ , y los llenos a la subred negativa,  $m_- = (1-P)|m_C|/2$ .  $J_{AA}=7,5$ ,  $J_{AB}=-J_{AC}=5$ . Solo en el caso  $P=0,25$  las dos subredes se cancelan, produciéndose una temperatura de compensación.

el cual el sistema tiene  $T_{comp}$ . Para este rango de valores la  $T_{crit}$  es casi constante. Estos resultados coinciden con el comportamiento observado experimentalmente en compuestos ternarios ferrimagnéticos, indicando que los sistemas mixtos de Ising, aunque sencillos, son un excelente modelo para estudiar cualitativamente este tipo de compuestos.

### Referencias Bibliográfica

- PALACIO F., ANTORRENA G., CASTRO M., BURRIEL R., RAWSON J., NICHOLAS J., SMITH B., BRICKLEBANK N., NOVOA J., RITTELS C. *Phys Rev Lett* 79(12): 2336, 1997.
- BLEUZAEN A., LOMENECH C., ESCAX V., VILLAIN F., VARRET F., CARTIER DIT MOULIN C., VERDAQUER M. *J Am Chem Soc* 122(28): 6648, 2002.
- OHKOSHI S., ABE Y., FUJISHIMA A., Y HASHIMOTO K. *Phys Rev Lett* (82): 0031, 1999.
- ZHOUG P., XUE D., LOU H., Y CHEN X. *Nano-letters* (2): 845, 2002.
- OHKOSHI S., IYODA T., FUJISHIMA A., HASHIMOTO K. *Phys Rev B* (56): 11642, 1997.
- OHKOSHI S., YORUZU S., SATO O., IYODA T., FUJISHIMA A. HASHIMOTO K. *Appl Phys Lett* (70): 1040, 1997.
- VILLARROEL J.E. (Trabajo de Grado, Maestría en Física) Universidad Simón Bolívar, Caracas (Venezuela) 2005.
- BUENDÍA G.M., NOVOTNY M.A. *J Phys Condens Matter* (9): 5951, 1997.
- BUENDÍA G.M., CARDONA R. *Phys Rev B* (59): 6784, 1999.
- NAKAMURA Y. *Phys Rev B* (62): 11742, 2000.