

Ա. Ի. ԱԼԻԽԱՆՅԱՆԻ ԱՆՎԱՆ ԱԶԳԱՅԻՆ ԳԻՏԱԿԱՆ ԼԱԲՈՐԱՏՈՐԻԱ
(ԵՐԵՎԱՆԻ ՖԻԶԻԿԱՅԻ ԻՆՍՏԻՏՈՒՏ)

Համիդ Արիան Չադ

**Մետաղ պարունակող նյութերի ջերմային խճճվածությունը և մագնիսական
հատկությունները**

Ա.04.02 - «Տեսական ֆիզիկա» մասնագիտությամբ ֆիզիկամաթեմատիկական
գիտությունների թեկնածուի գիտական աստիճանի հայցման ատենախոսության

ՍԵՂՄԱԳԻՐ

ԵՐԵՎԱՆ – 2021

A.I.ALIKHANYAN NATIONAL SCIENCE LABORATORY

(YEREVAN PHYSICS INSTITUTE)

Hamid Arian Zad

**THERMAL ENTANGLEMENT AND MAGNETIC PROPERTIES OF METAL-
CONTAINING MATERIALS**

SYNOPSIS

of Dissertation in 01.04.02 – Theoretical physics presented for the degree of candidate in
physical and mathematical Sciences

YEREVAN - 2021

Ատենախոսության թեման հաստատվել է Ա. Ի. Ալիխանյանի անվան Ազգային
Գիտական Լաբորատորիայի (ԵրՖի) գիտական խորհուրդում:
Գիտական ղեկավար՝

Ֆիզ.մաթ. գիտ. դոկտոր, պրոֆեսոր Ն.Ս. Անանիկյան (ԱԱԳԼ)

Պաշտոնական ընդդիմախոսներ՝

Ֆիզ.մաթ. գիտ. դոկտոր Հ. Մ. Բաբուջյան (ԱԱԳԼ)

Ֆիզ.մաթ. գիտ. թեկնածու Վ. Վ. Պապոյան (ՄՀՄԻ, Դուբնա, Ռուսաստան)

Առաջատար կազմակերպություն՝ ՀՀ ԳԱԱ Ռադիոֆիզիկայի և Էլեկտրոնիկայի
Ինստիտուտ, Աշտարակ, Հայաստան
Պաշտպանությունը կայանալու է 2021 թ. հունիսի 11-ին, ժամը 11:00-ին
ԱԱԳԼ-ում գործող ԲՈՂ-ի 024 «Ֆիզիկայի» մասնագիտական խորհրդում (Երևան -
0036, Ալիխանյան եղբայրների փ. 2):

Ատենախոսությանը կարելի է ծանոթանալ ԱԱԳԼ-ի գրադարանում:

Մեղմագիրն առաքված է 2021 թ. ապրիլի 30-ին:

Մասնագիտական խորհրդի գիտական քարտուղար

Ֆիզ.մաթ գիտ. դոկտոր

Հ. Մարուքյան

The subject of the dissertation is approved by the scientific council of the A. Alikhanyan
National Science Laboratory (AANL).

Scientific advisor:

Doctor of ph-math sciences, professor N. S. Ananikian (AANL)

Official opponents:

Doctor of ph-math sciences H. M. Babujian (AANL)

Candidate of ph-math sciences V. V. Papoyan (JINR, Dubna, Russia)

Leading organization: RA NAS Institute of Radiophysics and Electronics, Ashtarak, Armenia

Defense will take place on June 11 at 11:00 on meeting of the special council of the Higher
Attestation Commission of RA 024"Physics", acting in A.Alikhanyan National Science
Laboratory (Yerevan-0036, st. Alikhanyan Brothers 2).

The dissertation is available at the AANL library.

The synopsis is sent out on April 30 2021.

Scientific secretary of the special council

Doctor of ph-math sciences

H.Marukyan

Abstract

In this thesis we study the effects of Heisenberg exchange anisotropy and single-ion anisotropy on the ground-state phase spectra, magnetic, thermodynamic and quantum properties of various exactly solvable spin models. After an outline, we proceed to solve some modeled quantum spin systems by implementing different theoretical and computational methods such as exact diagonalization method, the transfer-matrix technique and the Quantum Monte-Carlo simulation (under open source ALPS package). Next, we investigate the influences of the anisotropies, interaction parameters together with the temperature and magnetic field on the physical behavior of solved spin systems. As a matter of fact, we demonstrate that the anisotropies dramatically change the quantum critically of the spin models at different parameter-planes. Analytical and numerical procedures given in this thesis provide original evidences for exactly solving either finite-size or infinite-size Heisenberg spin systems such as small spin clusters, metal-containing compounds, coordination polymers, pure Heisenberg and Ising-Heisenberg spin lattices under arbitrary conditions. The results delivered from examination of mentioned systems corroborate that the magnetization, susceptibility, specific heat, and entropy remarkably change nearby the critical points at which the first-order ground-state phase transition occurs. Moreover, we test the ability of cooling and heating of these spin models when anisotropies change. We observe that anisotropy variations can also influence the isothermal strategies such as magnetocaloric effect (MCE). During adiabatic demagnetization process, an enhanced MCE is seen in proximity of the magnetization jumps accompanied with the first-order ground-state phase transitions. We conclude that anisotropies play essential role to determine the efficiency of MCE of the models under consideration. We prove that, when a typical magnetic impurity is considered for one magnetic dimer of an Ising-Heisenberg heterotrimetallic coordination compound, the entanglement and the possibility of teleportation of information can be enhanced by tuning Heisenberg exchange anisotropy parameter. The same enhancement occurs in the tetranuclear Cu_4^{II} spin-1/2 square complex. Furthermore, It is demonstrated that, the magnetization and specific heat of an octanuclear nickel phosphonate cage and a family of octanuclear heterometallic 3d/4f complexes, $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Ln}_4^{\text{III}}$ ($\text{Ln} = \text{Tb}, \text{Dy}, \text{Ho}, \text{Er}$), undertake notable changes when an exchange anisotropy is considered for, respectively, $\text{Ni} \cdot \cdot \cdot \text{Ni}$ and $\text{Ni} \cdot \cdot \cdot \text{Ln}$ interactions. The ac susceptibility examinations of two compounds $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Tb}_4^{\text{III}}$ and $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Dy}_4^{\text{III}}$ disclose that their out-of-phase susceptibility component illustrates a maximum in its curve. In addition, the considered anisotropy substantially suppresses Cole–Cole plot, denoting single median relaxation time becomes smaller. A striking entanglement is observed between interacted Ni atoms of $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Ln}_4^{\text{III}}$ complexes depending on the exchange anisotropy of $\text{Ni} \cdot \cdot \cdot \text{Ln}$ interaction.

Timeliness and relevance

The exactly solvable spin models provide significant cornerstones of the quantum magnetism and material science. Within this subject, 1-D Heisenberg spin chains and ladders have attracted a great deal of attention, since they naturally bear strong magnetic properties dominated by quantum effects and reveal several kinds of zero-temperature phase transitions between intriguing ground states, that properly coincide with the change in magnetization process. Many theoretical researches have been devoted to realize the physics of the 1-D and 2-D pure Ising and Ising-Heisenberg spin models. Particular models from the later are Ising-Heisenberg spin chains, saw-tooth chains, Ising-Heisenberg lattice stripes and Ising-Heisenberg two-leg ladders that have attracted a lot of attention. This is because of being fabricable, and as exactly solvable models, they exhibit rich magnetic behaviors such that they play an important role in statistical physics. One of the most popular methods to solve a wide variety of 1-D and 2-D spin models with nearest-neighbor and that of the next-nearest-neighbor interactions is the so called transfer-matrix method. In condensed matter physics, one of the most investigated subjects is magnetic properties of the single molecular magnets (SMMs) which have attracted considerable attention to explore magnetic behavior of small cluster magnets. Full exact diagonalization method (ED), density matrix renormalization group (DMRG) and Quantum Monte Carlo (QMC) simulations are popular methods to solve the Hamiltonian of such nanomaterial magnets.

Aim of the dissertation

The goals of this thesis are summarized as follows.

- i) Investigating the ground-state phase transition, thermal entanglement, quantum coherence, and the ability of quantum teleportation in an exactly solvable spin-1/2 Ising-Heisenberg model of the heterotrimetallic coordination compound $[\text{Cu}^{\text{II}}\text{Mn}^{\text{II}}\text{L}^{\text{I}}] [\text{Fe}^{\text{II}}(\text{bpb})(\text{CN})_2] \cdot \text{ClO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$, including magnetic impurity on a unit block of the chain. Put together, examining quantum Fisher information and its first magnetic field derivative for this system with magnetic impurity is another goal. Shedding light on the exchange anisotropy dependence of the above-described quantities creates a main purpose of this dissertation.
- ii) Focusing on the magnetocaloric effects, and particularly, on the effects of anisotropies and four-spin Ising interaction on the magnetic and thermodynamic behaviors of double saw-tooth Ising-Heisenberg models and a mixed spin-(1/2, 1) Ising-Heisenberg two-leg ladder.
- iii) Studying the ground-state phase diagram, magnetization and specific heat of the spin-1/2 Ising-Heisenberg model on two modes of new triangle-hexagon lattices, i.e., spin-1/2 Ising-Heisenberg model on geometrically frustrated 2-D triangular lattices including exchange anisotropy.

- iv) Considering $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Ln}_4^{\text{III}}$ complexes, and exactly examining their magnetization process, magnetic relaxation studies using Cole-Cole formalism, and specific heat anomalies. Studying the entanglement negativity between $\text{Ni} \cdots \text{Ni}$ of these complexes makes an outstanding goal of this thesis.
- v) Considering tetranuclear Cu_4^{II} square complex on a finite-size spin-1/2 chain, and the exactly solving this model via full exact diagonalization method. Next, discussing the possible ground-state phase diagram and the magnetization of the model. Understanding effects of anisotropy, exchange interaction, and external magnetic field on the quantum correlations is further goal. Verifying the output state of the two-qubit entangled state by using the standard teleportation protocol.

Novelty of the dissertation

Several novelties are delivered by this work.

1. We have studied the influences of a typical magnetic impurity on the quantum properties of the Ising-Heisenberg spin-1/2 chain of the heterotrimetallic coordination compound $\text{Fe} - \text{Mn} - \text{Cu}$. The magnetic impurity has been considered on a local Heisenberg dimer of the chain. This scenario has not been considered so far. We have exactly solved the model within the transfer-matrix formalism and paid our attention to the study the thermal pairwise entanglement and l_1 -norm of the coherence as measures of the quantum correlation of the impurity dimer. The anisotropy property substantially affected the entanglement and quantum Fisher information of the model. We also understood that the thermal pairwise entanglement can be controlled and tuned by imposing a magnetic impurity into the model. Moreover, the inclusion of magnetic impurity led to remarkable enhancement in the average fidelity until reaching maximum value.
2. We modelled a spin-1/2 Ising-Heisenberg double saw-tooth ladder, a mixed spin- (1/2, 1) Ising-Heisenberg double saw-tooth ladder and a mixed spin-(1/2, 1) Ising-Heisenberg two-leg ladder with strong-rung interaction. We performed an extra term so-called cyclic four-spin Ising interaction in the Hamiltonian of the model, which is important to take in to account when the purpose is investigating the physical properties of spin ladders. We have also considered anisotropy property for the Heisenberg dimers in the z -direction. The most interesting finding for these selected models is that, alteration of the magnetic anisotropy and single-ion anisotropy considered for the integer spins slightly above (below) the critical points results in cooling/heating during the adiabatic demagnetization process, where the temperature rapidly falls down. In result, we realized that cyclic four-spin Ising term and anisotropies play an important role to understand cooling process together with discontinuous zero-temperature phase transitions of such spin ladders.

3. We have observed that quantum reductions of the spontaneous magnetizations of the Heisenberg and Ising spins of the spin-1/2 Ising-Heisenberg 2-D triangular lattices are the results of quantum fluctuations and strongly depend on the anisotropy. When an anisotropic interaction was considered, a singularity was observed in the specific heat curve of the triangles-in-triangles (TIT) models for the interaction region within the boundary of the quantum ferromagnetic phase.
4. We investigated the magnetization process, as well as, the specific heat of the $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Ln}_4^{\text{III}}$ complexes and the octanuclear nickel phosphonate cage including Heisenberg exchange anisotropy and single-ion anisotropy properties, by means of the full exact diagonalization procedure. The models show a complex magnetization landscape with a number of intermediate plateaus and magnetization jumps at low temperature accompanying with the ground-state phase transitions. We have uncovered that there is a notable entanglement between ferromagnetically interacted Ni atoms for a range of magnetic field. Applying a relatively high magnetic field, this entanglement sharply decreases upon cooling and disappears at a critical temperature.
5. We found several first-order phase transitions in the phase diagram of coupled tetranuclear Cu_4^{II} square complex. In addition, a special second-order phase transition between two localized one-magnon states with relevant magnetization in one-half of saturation magnetization has been detected when mixed ferromagnetic-antiferromagnetic exchange couplings between nearest-neighbor spins have been hypothesized. According to our observations we convincingly concluded that the local quantum uncertainty is generally more robust than other quantifiers to witness the ground-state phase transition in different Hamiltonian parameter sets.

Practical value

The main part of this thesis has been collected by the theoretical investigation of various kinds of magnetic materials that could be characterized in terms of Heisenberg spin models. Most of materials considered in this thesis have been synthesized and characterized by experimentalists, and their magnetic properties at moderate and high temperatures have been investigated theoretically and experimentally. In this thesis, we propose theoretical investigation of the low-temperature magnetic, thermodynamic and quantum properties of some interesting magnetic materials and report significant findings deduced from exactly solving the Hamiltonian of these materials with typical anisotropies. Our results can be practically applied when someone is interested in the magnetic and thermodynamic behaviors of such materials in the low-temperature regime. The magnetic ground-state phase transitions of considered materials in this work can be clearly understood from the derived outcomes and interpretations.

Main points to defend

We have obtained new results from studying several kinds of Heisenberg spin models that pleasantly represent real magnetic materials, hence make this thesis quite worth to defend. For example, we concluded that a typical magnetic impurity together with the exchange anisotropy remarkably change the quantum properties of the Ising-Heisenberg spin-1/2 chain of the heterotrimetallic coordination compound Fe – Mn – Cu. Particularly, we observed that the bipartite quantum entanglement can be controlled by imposing a magnetic impurity on a unit block. Moreover, the inclusion of magnetic impurity led to remarkable enhancement in the average fidelity until reaching maximum value. Besides, assuming the cyclic four-spin Ising term in the Hamiltonian of various Ising-Heisenberg double saw-tooth ladders and two-leg ladder counterpart affects on the co-ordinates of the special critical points at which the intersection of various ground states exists. Considering an anisotropic interaction for the quantum Heisenberg parts of spin-1/2 Ising-Heisenberg 2-D triangular lattices significantly change the ground-state phase spectra, spontaneous magnetizations and specific heat of the models. In addition, the low-temperature magnetic and thermodynamic properties of the octanuclear nickel phosphonate-based cage, heterometallic octanuclear $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Ln}_4^{\text{III}}$ (Ln = Tb, Dy, Ho, Er) compounds, and coupled tetranuclear Cu_4^{II} square complex undergo substantial changes when anisotropy parameters are considered for the models.

Structure of the dissertation

This dissertation composed of several parts including abstract, acknowledgments, list of figures and tables, introduction, four chapters, conclusion and list of used literature. Four chapters exhibit our theoretical activities and discoveries, that each one constitutes several sections, figures, separated preliminaries and conclusions. In the final part of this thesis main concluding remarks are mentioned.

Content of the dissertation

In the **Introduction** of this thesis, we study the magnetic, thermodynamic and quantum properties of a variety of quantum spin models with anisotropy. For this purpose, we utilize various methods to solve these models and in some cases we compare our results with the experimental data. By employing the transfer-matrix technique, we solve several 1-D and 2-D Ising-Heisenberg spin models and by extracting the partition function, we try to reproduce the physical behavior of these spin systems. Next, we investigate the same properties but for some small spin clusters including metal containing complexes with anisotropy. We perform both of ED method and QMC simulations to diagonalize the Hamiltonian of these materials. According to our novel results, we think this work is original and provides the first proposals possessing new outcomes for the ground-state phase transition, magnetic behavior and quantum properties of several kinds of spin models possessing anisotropy. This thesis is continued by forthcoming chapters with the relevant partitioned contents.

In **Chapter 1**, we rigorously examine the magnetization process and thermodynamics of some types of 1-D Ising-Heisenberg spin models such as Ising-Heisenberg spin chain of a heterotrimetallic Fe – Mn – Cu coordination polymer with magnetic impurity (Fig. 1).

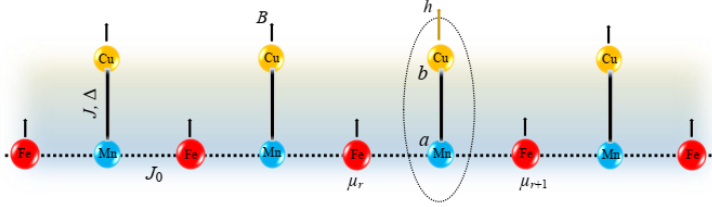


Figure 1: A representation of the spin-1/2 Ising-Heisenberg chain of Fe – Mn – Cu. The interaction between Fe^{3+} – Mn^{2+} ions is assumed to be Ising-type interaction, while interaction Mn^{2+} – Cu^{2+} to be an anisotropic Heisenberg exchange interaction. The magnetic impurity is indicated by elliptic dotted line.

The total Hamiltonian of the model including a typical magnetic impurity on a unit block is given by $H = \sum_{i=1}^N \mathcal{H}_i$, where the unit-block Hamiltonian \mathcal{H}_i is

$$\mathcal{H}_i = \mathcal{H}_i^{\text{host}} + \mathcal{H}_i^{\text{imp}} \quad (1)$$

The host Hamiltonian reads

$$\mathcal{H}_i^{\text{host}} = J (\mathbf{S}_{a,i}, \mathbf{S}_{b,i})_{\Delta} + J_0 S_{a,i}^z (\mu_i + \mu_{i+1}) - B_2 S_{a,i}^z - B_3 S_{b,i}^z - \frac{B_1}{2} (\mu_i + \mu_{i+1})$$

$$\text{for } i = 1, 2, \dots, r-1, r+1, \dots, N.$$

The impurity part of the Hamiltonian is given by

$$\mathcal{H}_i^{imp} = J(\mathbf{S}_{a,i}, \mathbf{S}_{b,i})_{\Delta} + J_0 S_{a,i}^z (\mu_i + \mu_{i+1}) - h_2 S_{a,i}^z - h_3 S_{b,i}^z - \frac{B_1}{2} (\mu_i + \mu_{i+1}),$$

for $i = r$.

in which the induced impurity parameter γ can be seed into the magnetic impurity $h_k = g_k B (I + \gamma)$ with $k = \{2, 3\}$.

The impurity effects on the bipartite quantum entanglement, quantum coherence, quantum Fisher information and the ability of teleportation of this spin system will be examined in detail.

In **Chapter 2**, a spin $S=1/2$ Ising-Heisenberg double saw-tooth ladder and two geometrically different mixed spin- $(1/2, 1)$ Ising-Heisenberg two-leg ladders are modeled as well. The ground-state phase transition of these models is investigated and a comparison is carried out between the ground-state phase diagram and their thermodynamics. Finally, the key results obtained for the anisotropies influences on the magnetization and cooling/heating ability of such systems are reported in this chapter.

In **Chapter 3**, are proposed two different types of 2-D highly frustrated spin- $1/2$ Ising-Heisenberg model on TIT lattices that are exactly solvable within the transfer-matrix technique in analogous of their 1-D spin models. The Hamiltonian of the modeled TIT lattices are defined as

$$H = -J_H \sum_{\Delta}^N [\Delta (S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y) + S_i^z S_j^z] - J_1 \sum_i^{3N} S_i^z \sigma_i^z. \quad (2)$$

We then exactly solve these unconventional models through the generalized startriangle transforming to an effective spin- $1/2$ Ising model on a triangular lattice as

$$Z_k(\sigma_{k1}^z, \sigma_{k2}^z, \sigma_{k3}^z) = \text{Tr}_k \exp(-\beta \mathcal{H}_k) = A \exp[\beta J_{\text{eff}}(\sigma_{k1}^z \sigma_{k2}^z + \sigma_{k2}^z \sigma_{k3}^z + \sigma_{k3}^z \sigma_{k1}^z)]. \quad (3)$$

The main part of this chapter will be dedicated to study ordered-disordered ground states, spontaneous magnetizations and the specific heat of the spin- $1/2$ Ising-Heisenberg models defined on two different TIT lattices, that each of them geometrically reduces to a simple Ising triangular lattice.

In **Chapter 4**, by taking advantage of the remarkable property of ED method and QMC simulations (implemented by ALPS-Package) we exactly solve some molecular cluster magnets such as octanuclear nickel phosphonate cage with butterfly-shaped geometry (Fig. 2). The Hamiltonian of such single molecular magnet can be expressed as

$$\begin{aligned} H = & -J_1 [\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2 + \mathbf{S}_3 \cdot \mathbf{S}_4 + \mathbf{S}_5 \cdot \mathbf{S}_6 + \mathbf{S}_7 \cdot \mathbf{S}_8] \\ & -J_2 [\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_3 + \mathbf{S}_2 \cdot \mathbf{S}_3 + \mathbf{S}_4 \cdot \mathbf{S}_5 + \mathbf{S}_4 \cdot \mathbf{S}_6 + \\ & \quad \mathbf{S}_5 \cdot \mathbf{S}_7 + \mathbf{S}_6 \cdot \mathbf{S}_7 + \mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_8 + \mathbf{S}_2 \cdot \mathbf{S}_8] \\ & -g\mu_B B \sum_i^8 S_i^z + D \sum_i^8 (S_i^z)^2, \end{aligned} \quad (4)$$

Also, we solve some lanthanide containing complexes such as two linked butterfly shaped $\text{Ni}_2^{\text{II}}\text{Ln}_2^{\text{III}}$ ($\text{Ln} = \text{Tb}, \text{Dy}, \text{Ho}, \text{Er}$), subunits as shown in Fig. 3. The Hamiltonian of $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Ln}_4^{\text{III}}$ complexes can be subsequently put into a diagonal form (5) as long as we introduce the total spin operator of the whole system as S_T and its z -component to be conserved quantities with well-defined quantum spin numbers $S_i = 0, 1, 2, \dots, 4(S_L + S_N)$, and $S_T^z = -S_t, -S_t + 1, \dots, S_t - 1, S_t$.

$$H = -\frac{J_{\text{nl}}}{2}S_t^2 - (J_{\text{nn}} - 3J_{\text{nl}})S_{\text{tNN}}^2 - (J_{\text{ll}} - 3J_{\text{nl}})S_{\text{tLL}}^2 - 2(J_{\text{nn}} - 5J_{\text{nl}})S_N^2 - 2(J_{\text{ll}} - 5J_{\text{nl}})S_L^2 - 4(\Delta_{\text{nl}} - J_{\text{nl}})(S_{\text{tNL}}^2 + S_L^2 + S_N^2) + 4D_n S_N^2 + 4D_l S_L^2 - 4\mu_B B(g_n S_t^z + g_l S_L^z). \quad (5)$$

So, the eigenenergies can be then expressed in terms of composite quantum spin numbers $\{S_t, S_{\text{tNN}}, S_{\text{tNL}}, S_L^z, S_{\text{tNN}}^z, S_N^z\}$ such that

$$E_\Lambda = -\frac{J_{\text{nl}}}{2}[S_t(S_t + 1)] - (J_{\text{nn}} - 3J_{\text{nl}})[S_{\text{tNN}}(S_{\text{tNN}} + 1)] - (J_{\text{ll}} - 3J_{\text{nl}})[S_{\text{tNL}}(S_{\text{tNL}} + 1)] - 2(J_{\text{nn}} - 5J_{\text{nl}})[S_{\text{tN}}(S_{\text{tN}} + 1)] - 2(J_{\text{ll}} - 5J_{\text{nl}})[S_{\text{tL}}(S_{\text{tL}} + 1)] - 4(\Delta_{\text{nl}} - J_{\text{nl}})(S_{\text{tNL}}^2 + S_L^2 + S_N^2) + 4D_n S_N^2 + 4D_l S_L^2 - 4\mu_B B(g_n S_N^z + g_l S_L^z), \quad (6)$$

which principally entails the values $S_{\text{tNN}} = 0, 1, 2$; $S_{\text{tNL}} = |S_L - 1|, \dots, S_L + 1$; $S_{\text{tNL}}^z = -S_{\text{tNL}}, \dots, S_{\text{tNL}}$ and so on. Here $g_n = 2$ and g_l is gyromagnetic factor of lanthanides and μ_B is the Bohr magneton. The local g_i -tensors are assumed to be isotropic with the g_i principal values.

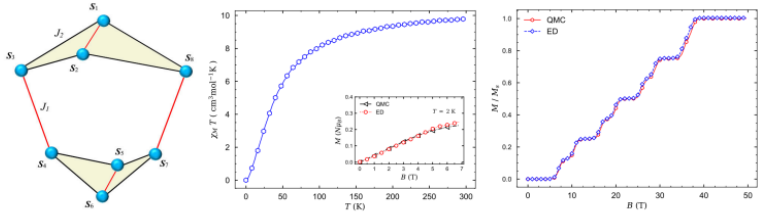


Figure 2: Schematic structure of the Heisenberg octanuclear nickel phosphonate cage. The balls denote Ni atoms that are connected together via Wing-Body (WB) interadimer interaction J_1 and the corresponding Body-Body (BB) interdimer interaction J_2 . Middle panel: QMC results obtained for the temperature dependence of the product of magnetic susceptibility times the temperature $\chi_M T$ for the Heisenberg octanuclear nickel phosphonate-based cage in the absence of the magnetic field ($B = 0$), assuming fixed values of $J_1 = 7.6 \text{ cm}^{-1}$ and $J_2 = -22.4 \text{ cm}^{-1}$. The inset shows deduced magnetization per saturation M/M_s by QMC simulation and ED method as a function of the external magnetic field B , assuming fixed values of $J_1 = 7.6 \text{ cm}^{-1}$, $J_2 = -22.4 \text{ cm}^{-1}$ at moderate temperature $T = 2 \text{ K}$. Due to compare with the experimental data, other parameters have been taken as $\Delta_1 = J_1$, $\Delta_2 = J_2$ and $D = 0$. Right panel: The ED and QMC results for the magnetization per saturation value of the model versus magnetic field at low temperature $T = 1 \text{ K}$ for the same fixed values of other parameters as middle panel but divided by k_B , namely, $J_1/k_B = 7.6 \text{ K}$ and $J_2/k_B = -22.4 \text{ K}$.

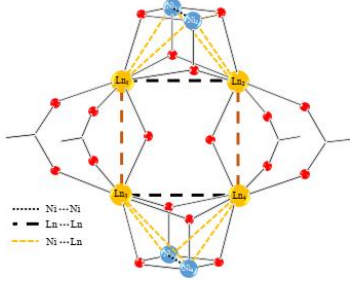


Figure 3: Butterfly-shaped molecular core of complexes **a**–**d**. Orange balls present lanthanides, blue balls denote nickel atoms. All magnetic coupling constants are illustrated in this figure.

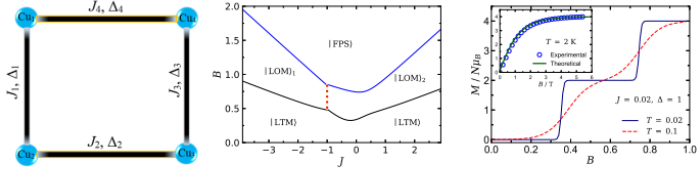


Figure 4: schematic structure of the four spin-1/2 Cu_4^{II} complex on the XXZ Heisenberg model with the corresponding magnetic exchange interactions. Middle panel: the ground-state phase diagram of the model in the $B - J$ plane for fixed $\Delta = 1$. (Right panel) The total magnetization with respect to the transverse magnetic field B for fixed values $J = 0.02$ and $\Delta = 1$ at two different temperatures $T = 0.02$ and $T = 0.1$. The inset displays the experimental data (blue cycles) and our numerical data fitting (green solid line) for the field dependence of the magnetization at high temperature $T = 2$ K for the same set of exchange couplings to those reported by experiment, i.e., $J_1 = -|\Delta_1| = +5.81 \text{ cm}^{-1}$, $J_2 = -|\Delta_2| = +2.36 \text{ cm}^{-1}$, $J_3 = -|\Delta_3| = +1.73 \text{ cm}^{-1}$ and $J_4 = -|\Delta_4| = +2.37 \text{ cm}^{-1}$.

Further, a coupled tetranuclear Cu_4^{II} square complex is solved in parallel (see Fig. 4). The Hamiltonian of the model can be expressed as follows

$$\begin{aligned}
 H = & [-J_1(S_1^x S_2^x + S_1^y S_2^y) + \Delta_1 S_1^z S_2^z] + \\
 & [-J_2(S_2^x S_3^x + S_2^y S_3^y) + \Delta_2 S_2^z S_3^z] + \\
 & [-J_3(S_3^x S_4^x + S_3^y S_4^y) + \Delta_3 S_3^z S_4^z] + \\
 & [-J_4(S_4^x S_1^x + S_4^y S_1^y) + \Delta_4 S_4^z S_1^z] - \\
 & \mu_B g B (S_1^z + S_2^z + S_3^z + S_4^z).
 \end{aligned} \tag{7}$$

Next, we study the magnetic properties and the specific heat anomalies of such materials with anisotropy in the presence of an external magnetic field quite rigorously. We compare our results with the relevant experimental data and conclude that our numerical results are in a well

agreement with the experimental data analysis. For example we show our results for the octanuclear nickel phosphonate cage with butterfly-shaped geometry in middle panel of Fig. 2), and for the coupled tetranuclear Cu_4^{II} square complex in right panel of Fig. 4. Ultimately, we verify the influences of typical anisotropies on the groundstate phase diagram, magnetization and the specific heat of such materials. Further, we investigate the anisotropy effects on the dc and ac susceptibilities and qutrit-qutrit quantum correlations between nickel atoms of $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Ln}_4^{\text{III}}$ complexes.

In **Conclusions**, the main results of the dissertation are listed:

1. One of our notable results is that the thermal pairwise entanglement of Fe – Mn – Cu chain polymer can be controlled and tuned by imposing a magnetic impurity into the model. Based on the investigations carried out in chapter 1, we proved that QFI can be considered as a useful quantum tool for estimating the quantum phase transition of the Ising-Heisenberg spin-1/2 chain of the heterotrimetallic coordination compound Fe – Mn – Cu. We have demonstrated that at low-temperature regime, the inclusion of magnetic impurity leads to remarkable enhancement in the average fidelity until reaching maximum value. Based on our findings regarding the model with magnetic impurity, we claimed that the average fidelity becomes more robust compared with the original model, enabling teleportation of information in the regions of very strong magnetic fields.
2. The most interesting finding for the Ising-Heisenberg spin ladders discussed in chapter 2 is that, alteration of the magnetic anisotropy and single-ion anisotropy considered for the integer spins slightly above (below) the critical points results in cooling/heating during the adiabatic demagnetization process, where the temperature rapidly falls down. So, the anisotropies play an important role to understand cooling process together with discontinuous zero-temperature phase transitions of such spin ladders. We have also realized that there are some particular points in the field-induced ground-state phase diagram of the model which makes the intersection of several different ground states. Assuming the cyclic four-spin Ising term affects on the co-ordinates of these special points. It has been demonstrated that, at low temperatures, the specific heat curve anomalously behaves nearby the critical magnetic fields at which a magnetization jump occurs. An anomalous magnetocaloric effect has been observed close to respective magnetization jumps of the Ising-Heisenberg two-leg ladder.
3. We uncovered in chapter 3 that the Ising-Heisenberg model on two new modeled TIT lattices exhibits a rich magnetic behavior with several unconventional quantum phases and boundaries. We witnessed that a quantum reduction of the spontaneous magnetizations of the Heisenberg and Ising spins is the result of quantum fluctuations and strongly depends on the anisotropy. Ultimately, it has been demonstrated that the specific heat of Ising-Heisenberg model on the TIT lattices exhibits a logarithmic singularity from the standard Ising universality class for the isotropic ferromagnetic Heisenberg interaction, where the model is in the ground state CFP.
4. In chapter 4, we observed that the Ni containing complexes show a complex magnetization landscape with a number of intermediate plateaus and magnetization jumps at low temperature accompanying with the ground-state phase transitions. Also, alteration of the single- and two-ion anisotropies affected on the magnetization

process and the thermodynamics of these models. We have realized that there is a notable entanglement between ferromagnetically interacted Ni atoms of $\text{Ni}_4^{\text{II}}\text{Ln}_4^{\text{III}}$ complexes for a special range of magnetic field. Surprisingly, considering exchange anisotropy for Ni...Ln interactions mostly leads to weaken the thermal pairwise entanglement in compounds b–d, and to enhance the entanglement in compound a. Furthermore, we found several first-order phase transitions in the phase diagram of coupled tetranuclear Cu_4^{II} square complex. In addition, a special second-order phase transition between two localized one-magnon states with relevant magnetization in one-half of saturation magnetization has been detected when mixed ferromagnetic-antiferromagnetic exchange couplings between nearest-neighbor spins have been hypothesized. We have demonstrated that all quantum correlation quantifiers behave anomalously close to the critical points at which a typical ground-state phase transition occurs. According to our observations we convincingly concluded that the local quantum uncertainty is generally more robust than other quantifiers to witness the ground-state phase transition in different Hamiltonian parameter sets.

Publications list

1. H. Arian Zad and M. Rojas, Quantum coherence, quantum Fisher information and teleportation in the Ising-Heisenberg spin chain model of a heterotrimetallic Fe-Mn-Cu coordination polymer with magnetic impurity, *Physica E* **126**, (2021) 114455 (12pp).
2. H. Arian Zad, N. Ananikian and M. Jaščur, Single-ion anisotropy effects on the demagnetization process of the alternating weak-rung interacting mixed spin-(1/2, 1) Ising-Heisenberg double saw-tooth ladders, *Phys. Scr.* **95**, (2020) 095702 (8pp).
3. H. Arian Zad, R. Kenna and N. Ananikian, Magnetic and thermodynamic properties of the octanuclear nickel phosphonate-based cage, *Phys. A* **538**, (2020) 122841 (7pp).
4. H. Arian Zad, A. Trombettoni and N. Ananikian, Spin-1/2 Ising-Heisenberg Cairo pentagonal model in the presence of an external magnetic field: effect of Landé g factors *Eur. Phys. J. B* **93**, (2020) 200 (10pp).
5. H. Arian Zad, M. Sabeti, A. Zoshki and N. Ananikian, Electrocaloric effect in the two spin-1/2 XXZ Heisenberg edge-shared tetrahedra and spin-1/2 XXZ Heisenberg octahedron with Dzyaloshinskii-Moriya interaction, *J. Phys.: Condens. Matter* **31**, (2019) 425801 (11pp).
6. H. Arian Zad, N. Ananikian, R. Kenna, The specific heat and magnetic properties of two species of spin-1/2 ladders with butterfly-shaped unit blocks, *Jour. Phys.: Condens. Matter* **31**, (2019) 445802 (11pp).
7. H. Arian Zad, A. Zoshki and M. Sabeti, Magnetic Properties of an Antiferromagnetic Spin-1/2 XYZ Model in the Presence of Different Magnetic Fields: Finite-Size Effects of Inhomogeneity Property, *Comm. in Theor. Phys.* **71**, (2019) 1253-1260.
8. H. Arian Zad and N. Ananikian, Phase transitions and magnetization of the mixed spin Ising-Heisenberg double sawtooth frustrated ladder *J. Phys.: Condens. Matter* **30**, (2018) 165403 (9pp).
9. H. Arian Zad and N. Ananikian, Thermal entanglement in the mixed-spin Ising-Heisenberg double sawtooth frustrated ladder, *Solid State Comm.* **276**, (2018) 24-27.
10. H. Arian Zad and N. Ananikian, Phase transitions and thermal entanglement of the distorted Ising-Heisenberg spin chain: topology of multiple-spin exchange interactions in spin ladders *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, (2017) 455402 (11pp).
11. H. Arian Zad, Entanglement in the Mixed-three-spin XXX Heisenberg Model with the Next-nearest-neighbour Interaction, *Acta Phys. Pol. B* **46**, (2015) 1911-1924.

Մետաղ պարունակող նյութերի ջերմային խճճվածությունը ու մագնիսական հատկությունները

Ամփոփում

1. Մեր ուշագրավ արդյունքներից մեկն այն է, որ Fe - Mn - Cu շղթայի պոլիմերի ջերմային գույգի խճճվածությունը կարող է կառավարվել և կարգաբերվել՝ մոդելի մեջ մագնիսական խառնուրդ մտցնելով: Հիմնվելով առաջին գլխի ուսումնասիրության վրա՝ մենք ցույց ենք տվել, որ QFI-ն կարող է համարվել որպես օգտակար քվանտային գործիք Fe-Mn-Cu հետերոեռետաղային կոորդինացման բաղադրությունում $\frac{1}{2}$ սպինով Իզինգ-Հայզենբերգ շղթայի քվանտային փուլային անցումը գնահատելու համար: Մենք ցույց ենք տվել, որ ցածր ջերմաստիճանային ռեժիմում, մագնիսական խառնուկների ներմուծումը բերում է ճշտության միջինի նշանակալի աճի մինչև մաքսիմում արժեքին հասնելը: Հիմնվելով մեր մագնիսական խառնուկների արդյունքների վրա՝ մենք պնդում ենք, որ միջին ճշգրտությունը դառնում է ավելի ուժեղ, համեմատած սկզբնական մոդելի հետ հնարավոր դարձնելով ինֆորմացիայի տելեպորտացիան ուժեղ մագնիսական դաշտերի տիրույթներում:

2. Իզինգ-Հայզենբերգի սպինային հարթակների ամենահետաքրքիր բացահայտումը, որը քննարկվել է երկրորդ գլխում, այն է, որ մագնիսական անիզոտրոպիան և մեկ իոնային անիզոտրոպիան փոխելը, որը դիտվում է ամբողջ սպինի համար, փոքր-ինչ վերև (ներքև) կրիտիկական կետերից, հանգեցնում է սառեցման / տաքացմանը ադիաբատական ապամագնիսացման պրոցեսի ընթացքում, որտեղ ջերմաստիճանը արագորեն ընկնում է Այսպիսով, անիզոտրոպիան կարևոր դեր է խաղում հովացման գործընթացը հասկանալու հարցում, ինչպես նաև սպինային հարթակների ընդհատ գրոյական ջերմաստիճանային փուլային անցումները հասկանալու հարցում: Մենք նաև տեսանք, որ դաշտային ինդուկցիայի հիմնական վիճակի փուլային դիագրամում կան մի քանի հատուկ կետեր, ինչը կազմում է մի քանի տարբեր հիմնական վիճակների հատման կետ: Ենթադրենք, որ Իզինգի ցիկլիկ չորս սպինային էլեմենտն ազդում է այս հատուկ կետերի կոորդինատների վրա: Ցուցադրվել է, որ ցածր ջերմաստիճանում տեսակարար ջերմունակության կորը անոմալ կերպով է պահում իրեն կրիտիկական մագնիսական դաշտերի մոտ, որոնցում տեղի է ունենում մագնիսացման ցատկ: Երկկողմանի Իզինգ-Հայզենբերգ հարթակների մագնիսացման համապատասխան ցատկերի մոտ նկատվել է անոմալ մագնիտոկալորիական ազդեցություն:

3. Երրորդ գլխում բացահայտել ենք, որ Իզինգ-Հայզենբերգ մոդելը երկու նոր մոդելավորված TIT ցանցերի վրա ցուցադրում է հարուստ մագնիսական վարքագիծ որոշակի ոչ ստանդարտ քվանտային անցումներով և սահմաններով: Մենք բացահայտեցինք, որ Հայզենբերգի և Իզինգի սպինների քվանտային սպոնտան մագնիսացման կրճատումը արդյունք է քվանտային ֆլուկտուացիայի և ուժեղ կախված է անիզոտրոպիայից: Ի վերջո, ցույց է տրվել, որ տեսակարար

ջերմունակությունը Իզինգ-Հայզենբերգ մոդելի TIT ցանցի վրա ցուցադրում է լրգարիթմական եզակիություն ստանդարտ Իզինգի ունիվերսալության դասից, իզոտրոպ ֆեռոմագնետիկ Հայզենբերգի փոխազդեցության համար, որտեղ մոդելը հիմնական CFP վիճակում է:

4. Չորրորդ գլխում հետազոտվել է, որ նիկել պարունակող խառնուրդները ցույց են տալիս բարդ մագնիսացման լանդշաֆտ ցածր ջերմաստիճանում մի շարք միջանկյալ հարթակներով և մագնիսացման թռիչքներով՝ ուղեկցված հիմնական վիճակի փուլային անցումներով: Նաև, մեկ և երկու իոնային անիզոտրոպիաների փոփոխությունը ազդում է մագնիսացման պրոցեսի և մոդելի թերմոդինամիկայի վրա: Հասկացել ենք, որ կա զգալի խճճվածություն ֆեռոմագնետիկորեն փոխազդող NiII4 LnIII4 նիկելի ատոմների խառնուրդների միջև մագնիսական դաշտի որոշակի տիրություն: Ջարմանալի է, որ հաշվի առնելով անիզոտրոպիայի փոխանակումը Ni · · · Ln համար փոխազդեցությունները հիմնականում բերում են ջերմային զույգերի խճճվածության թուլացման b-d միացություններում և ուժեղացնում խճճվածությունը որ միացություններում: Ավելին, մենք գտանք որոշ առաջին կարգի փուլային անցումներ միացված քառամիջուկ CuII4 քառակուսային կոմպլեքս փուլային դիագրամում: Բացի այդ, հայտնաբերվել է հատուկ երկրորդ կարգի փուլային անցում, երկու տեղայնացված մեկ մագնոնային վիճակների միջև, որոնց համապատասխան մագնիսացումը հավասար է հագեցվածության մագնիսացման կեսին, երբ առաջադրվեց խառը ֆեռոմագնիսական հակաֆեռոմագնիսական կապերի փոխանակման վարկած՝ ամենամոտ հարևանների սպինների միջև: Մենք ցույց ենք տվել, որ բոլոր քվանտային կորելացիոն քվանտորները դրսևորում են անոմալ վարքագիծ այն կրիտիկական կետերի մոտ, որոնցում տեղի է ունենում տիպային հիմնական վիճակի փուլային անցում: Մեր դիտարկումների համաձայն մենք համոզիչ կերպով եզրակացրեցինք, որ տեղային քվանտային անորոշությունը ընդհանրապես ավելի ուժեղ է, քան այլ հիմնական վիճակի փուլային անցմանը մասնակցող քվանտորներինը տարբեր համիլտոնյան պարամետրերի հավաքածուներով:

1. Один из наших замечательных результатов заключается в том, что запутанность термической пары цепного полимера Fe-Mn-Cu можно контролировать и корректировать, вставив в модель магнитную смесь. Основываясь на исследовании первой главы, мы показали, что QFI можно рассматривать как полезный квантовый инструмент в гетерометаллическом координационном составе Fe-Mn-Cu для оценки квантового фазового сдвига цепочки Изинга-Гейзенберга. Мы показали, что введение магнитных сплавов при низких температурах приводит к значительному увеличению средней точности до достижения максимального значения. Основываясь на результатах наших магнитных смесей, мы утверждаем, что средняя точность становится выше по сравнению с исходной моделью, что позволяет телепортировать информацию в диапазоне сильных магнитных полей.
2. Наиболее интересным открытием спиновых платформ Изинга-Гейзенберга, которое обсуждалось во второй главе, является то, что изменение магнитной анизотропии и анизотропии одного иона, наблюдаемое для всего спина, немного выше/ниже критических точек, приводит к замораживанию / оттаиванию в процессе адиабатического размагничивания, когда температура быстро падает. Таким образом, анизотропия играет важную роль в понимании процесса охлаждения, а также в понимании прерывистых фазовых переходов при нулевой температуре спиновых платформ. Мы видели, что есть несколько особых точек на фазовой диаграмме основного состояния индукции поля, которое является пересечением нескольких различных основных состояний. Предположим, что четырехспиновый элемент цикла Изинга влияет на координаты этих особых точек. Показано, что при низких температурах кривая удельной теплопроводности ведет себя аномально вблизи критических магнитных полей, в которых происходит скачок намагниченности. Аномальный магнитокалорический эффект наблюдался при соответствующих скачках намагниченности двусторонних платформ Изинга-Гейзенберга.
3. В главе 3 мы выявили, что модель Изинга-Гейзенберга демонстрирует богатое магнитное поведение на двух недавно смоделированных сетях ТПТ с некоторыми нестандартными квантовыми переходами и границами. Мы обнаружили, что уменьшение квантовой спонтанной намагниченности спинов Гейзенберга-Изинга является результатом квантовой флуктуации, которая сильно зависит от анизотропии. Наконец, было показано, что удельная теплоемкость сети Изинга-Гейзенберга ТПТ демонстрирует логарифмическую уникальность по сравнению со стандартным классом универсальности Изинга для изотропного ферромагнитного взаимодействия Гейзенберга, когда модель находится в основном состоянии CFP.
4. В главе 4 мы исследовали, что никельсодержащие смеси демонстрируют сложный ландшафт намагничивания при низких температурах с рядом промежуточных платформ и скачков намагниченности, сопровождаемых фазовыми переходами из основного состояния. Также изменение одно- двух ионной анизотропии влияет на термодинамику модели процесса намагничивания. Мы поняли, что существует значительная запутанность в определенном диапазоне магнитного поля между ферромагнитно взаимодействующими смесями атомов никеля $Ni^{II}_4 Ln^{III}_4$. Странно, что учитывая обмен анизотропией на $Ni...Ln$, взаимодействия в основном приводят к уменьшению запутанности тепловых пар в соединениях b-d и, увеличивают запутанность в соединениях a. Кроме того, мы обнаружили некоторые фазовые переходы первого рода

квадратичной комплексной фазовой диаграмме соединенного четырех ядерного Cu^{II}_4 . Кроме того, при выдвижении гипотезы о смешанных ферромагнитных антиферромагнитных связях между спинами ближайших соседей был обнаружен особый фазовый переход второго порядка между двумя локализованными одномагнитными состояниями, соответствующая намагниченность которых равна половине намагниченности насыщения. Мы доказали, что все свойства квантовой корреляции проявляют аномальное поведение в критических точках, где происходит постепенный переход. И пришли к выводу, что локальная квантовая неопределенность обычно более надежна, чем другие кванторы, что указывает на фазовый переход в основное состояние в различных наборах параметров гамильтониана.

