Письма в ЖЭТФ, том 93, вып. 7, с. 426 – 430

Экранирование магнитного поля магнитными монополями в спиновом льде

И. А. Рыжкин[1], *М. И. Рыжкин*

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Московская область, Россия

Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Московская область, Россия

Поступила в редакцию 2 февраля 2011 г.

После переработки 18 февраля 2011 г.

Рассмотрено экранирование внешнего магнитного поля магнитными монополями в спиновом льде. Показано, что поляризация магнитной системы при движении монополей приводит к неполной экранировке внешнего магнитного поля. Вычислены статическая магнитная проницаемость спинового льда, длина экранирования внешнего магнитного поля. Приведены численные оценки рассмотренных величин и обсужден физический смысл введения монополей.

Термин спиновый лед был введен в [1] для обозначения материалов типа $\mathrm{Dy_2Ti_2O_7}$, $\mathrm{Ho_2Ti_2O_7}$, $\mathrm{Yb_2Ti_2O_7}$. Происхождение термина объясняется аналогией между распределением ориентаций спинов в магнитных материалах и распределением дипольных моментов водородных связей в обыкновенном льде [2]. Оказалось, что гамильтонианы реальных спинов в спиновом льде и гамильтониан псевдоспинов в обыкновенном льде формально имеют одинаковый вид антиферромагнитного гамильтониана Изинга, причем спины располагаются в вершинах связанных правильных тетраэдров, изображенных на рис. 1.

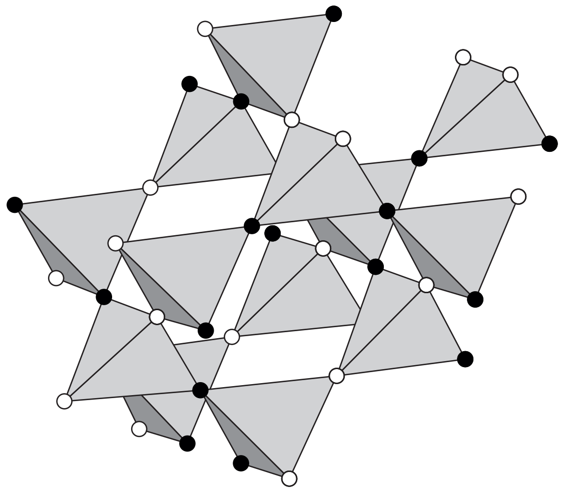

Рис. 1. Решетка типа сфалерита, образованная связанными правильными тетраэдрами. Магнитные ионы находятся в вершинах тетраэдров. Магнитные моменты, направленные к центрам (от центров) тетраэдров, помечены темными (светлыми) кружками

Сами же тетраэдры образуют решетку типа сфалерита: такую же решетку образуют ионы A, B в полупроводниковых соединениях $\mathrm{A_2B_6}$ или ионы кислорода в кубическом льду Ic. Из-за наличия замкнутых циклов с нечетным числом вершин все правила антиферромагнитного упорядочения не могут быть выполнены одновременно. Такие решетки называют фрустрированными, а соответствующие магнитные материалы геометрически фрустрированными магнетиками. Фрустрации приводят к макроскопическому вырождению основного состояния и наличию неисчезающей при $T \to 0$ энтропии.

В состояниях с наименьшей энергией ориентации спинов должны удовлетворять правилу льда: два спина каждого тетраэдра направлены к центру, а два других – от центра любого тетраэдра. Пример ориентации спинов в основном состоянии изображен на рис. 1, 2, причем на рис. 1 спины, направленные в центры (от центров) тетраэдров, помечены темными (светлыми) кружками. Из рис. 2 следует, что в основном состоянии ориентации спинов заморожены, так как переориентация любого спина приводит к нарушению правила льда и к повышению энергии. Однако при конечной температуре возможно существование нарушений правила льда двух типов: тетраэдров с тремя спинами, направленными к центру (и одним – от центра), и тетраэдров с тремя спинами, направленными от центра (и одним – к центру) рассматриваемого тетраэдра. Их называют положительными и отрицательными магнитными дефектами, соответственно [3]. Положительные и отрицательные дефекты рождаются парами, но в дальнейшем могут быть пространственно разделены без дополнительных нарушений правила льда. Процесс образования пары дефектов и их пространственного разделения изоб-

[1]e-mail: ryzhkin@issp.ac.ru

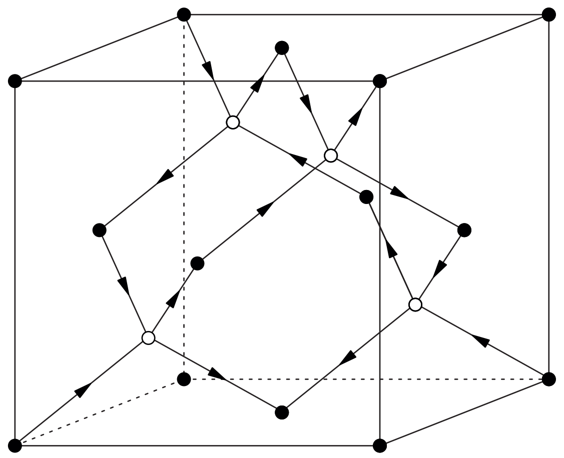

Рис. 2. Фрагмент решетки спинового льда, магнитным ионам соответствуют стрелки. Направления магнитных моментов в основном состоянии удовлетворяют правилу льда: в каждый узел входит и выходит по две стрелки

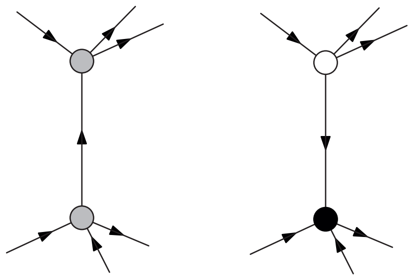

Рис. 3. Образование пары магнитных монополей путем переворота магнитного момента вертикальной связи: положительный (отрицательный) магнитные монополи помечены темным и светлыми кружками

ражен на рис. 3, 4. Отметим две важные черты основного состояния. Во-первых, переориентация любого спина, входящего в состав дефекта, приводит к

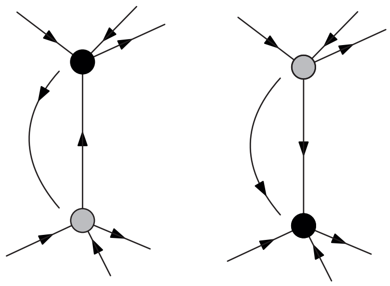

Рис. 4. Процесс движения положительного магнитного монополя в результате переворота магнитного момента вертикальной связи. Движение положительного магнитного монополя ориентирует магнитные моменты вдоль траектории движения

его переходу на соседний узел, но ни к его уничтожению (если рядом нет дефекта противоположного знака или поверхности). Во-вторых, при движении по решетке дефекты переориентируют спины на своем пути. Фактически, пара родившихся и затем пространственно разделенных дефектов остается связанной струной спинов, выстроенных вдоль пути их движения.

Как было показано в [3], положительные и отрицательные дефекты можно рассматривать как квазичастицы, несущие положительный и отрицательный магнитный заряд, то есть как магнитные монополи. Впоследствии аналогичные квазичастицы из других соображений были предсказаны в [4] и экспериментально обнаружены в [5–8]. Последние работы вызвали необычайно сильный интерес к изучению спинового льда. В связи с этим представляет интерес анализ экспериментов, в которых магнитные монополи могли бы проявиться наиболее явно. В данной работе мы теоретически рассмотрим задачу об экранировании магнитного поля в спиновом льду и вычислим статическую магнитную проницаемость спинового льда.

Для удобства кратко приведем основные результаты работ [3], необходимые в дальнейшем. Рассмотрим узел с положительным магнитным дефектом (смотри рис. 3, вершина, помеченная темным кружком). Окружим его замкнутой поверхностью, содержащий только один тетраэдр. Легко видеть, что поток намагниченности через данную поверхность отличен от нуля. Следовательно, дивергенция намагниченности отлична от нуля, $\operatorname{div}\mathbf{M} \neq 0$, то есть область, занятая положительным магнитным дефектом, содержит положительный магнитный заряд. Напряженность магнитного поля определяется уравнением, аналогичным уравнению Пуассона в электростатике:

$$\operatorname{div}\mathbf{H} + 4\pi\operatorname{div}\mathbf{M} = 0 \Rightarrow \operatorname{div}\mathbf{H} = 4\pi\rho_m, \qquad (1)$$

где мы ввели обозначение для объемной плотности магнитного заряда $\rho_m = -\operatorname{div}\mathbf{M}$ по аналогии с объемной плотностью электрического заряда. Магнитный заряд монополей равен $q_{m\pm} = \pm 2m/a$, где m – магнитный момент магнитных атомов, a – расстояние между центрами ближайших тетраэдров. Сила, действующая на магнитный заряд q_m в магнитном поле с напряженностью $\mathbf{H}$, равна $\mathbf{f} = q_m\mathbf{H}$ [3].

Пусть полупространство $x > 0$ занято спиновым льдом. Приложим параллельно оси x внешнее однородное магнитное поле H_0. Под действием магнитного поля монополи будут перераспределяться в пространстве и экранировать внешнее магнитное поле. Задача состоит в нахождении стационарного распределения монополей. Принципиальным отличием от обычной электростатической задачи является тот факт, что монополи при движении по решетке ориентируют ее, и второй монополь по этому пути пройти не может, что явно видно из рис. 4. Таким образом, поток монополей приводит к поляризации основного состояния: к появлению некоторого векторного поля и уменьшению энтропии системы. Удобный способ учета этих эффектов был разработан в физике льда [9, 10]. Для рассматриваемой задачи этот метод сводится к следующему. Упорядочивающее действие движения монополей может быть описано конфигурационным вектором, который определяется через плотности потоков монополей следующим уравнением:

$$\Omega(\mathbf{r},t)-\Omega(\mathbf{r},0)=\int_0^t[\mathbf{j}_1(\mathbf{r},t')-\mathbf{j}_2(\mathbf{r},t')]dt', \qquad (2)$$

где индексы $i=1,2$ относятся к положительным и отрицательным монополям соответственно. При этом сами плотности потоков монополей выражаются через движущие силы линейными соотношениями

$$\mathbf{j}_i=\frac{\mu_i n_i}{|m_i|}(q_{mi}\mathbf{H}-\eta_i\Phi\Omega)-D_i\nabla n_i, \qquad (3)$$

где μ_i, n_i, q_{mi}, D_i – подвижности, концентрации, заряды и коэффициенты диффузии монополей, $\eta_{1,2}=\pm1$, $\Phi=8akT/\sqrt{3}$. Уравнение (3) показывает, что выражение $q_{mi}\mathbf{H}-\eta_i\Phi\Omega$ имеет смысл движущей силы, действующей на монополи. В частности, в частично упорядоченной структуре с ненулевым конфигурационным вектором $\Omega\neq0$ плотности потоков дефектов не равны нулю даже в отсутствие внешнего магнитного поля и градиента концентрации. Для стационарного распределения дефектов полагаем $\mathbf{j}_i=0$, и из этого условия получаем для концентраций

$$n_i=n_0\exp\left(-\frac{q_{mi}\psi-\eta_i\Phi\chi}{kT}\right), \qquad (4)$$

где потенциалы ψ,χ связаны с проекциями полей на ось x соотношениями $H=-d\psi/dx, \Omega=-d\chi/dx$, концентрация дефектов в отсутствие полей равна $n_0=(2N/3V)\exp(-\epsilon_0/2kT)$, ϵ_0 – энергия образования пары монополей, $N/V=3\sqrt{3}/8a^3$ – концентрация вышеупомянутых тетраэдров, $\mu_i/D_i=|q_{mi}|/kT$ – соотношения Эйнштейна между подвижностью и коэффициентами диффузии. Для определения потенциалов имеем два уравнения:

$$d^2\psi/dx^2=4\pi q_m(\delta n_1-\delta n_2), \qquad (5)$$

$$d^2\chi/dx^2=(\delta n_1-\delta n_2). \qquad (6)$$

Уравнение (5) является уравнением Пуассона для потенциала магнитного поля, а уравнение (6) получается взятием дивергенции от уравнения (2) и использованием уравнения непрерывности. Комбинируя уравнения (5), (6) и вводя безразмерные функцию $F=(q_m\psi-\Phi\chi)/kT$ и координату $\xi=\lambda x$, где параметр λ определяется уравнением

$$\lambda^2=\frac{4}{a^2}\left(\frac{4\pi q_m^2}{\Phi}+1\right)\exp\left(-\frac{\epsilon_0}{2kT}\right), \qquad (7)$$

получаем уравнение в безразмерном виде:

$$d^2F/d\xi^2=\mathrm{sh}(F). \qquad (8)$$

К этому уравнению надо добавить граничные условия. На бесконечности, при $\xi\to\infty$, концентрации монополей должны стремиться к равновесным значениям. Тогда из уравнений (4) следует условие

$$F(\xi=\infty)=0. \qquad (9)$$

Чтобы получить граничные условия при $\xi=0$, предположим, что концентрации монополей везде имеют конечное значение, что означает отсутствие поверхностной плотности монополей. Но тогда, в силу уравнений (5), (6), имеем условия на поверхности

$$\Omega(0)=-\frac{\partial\chi}{\partial x}(0)=0,\quad H(0)=-\frac{\partial\psi}{\partial x}(0)=H_0. \qquad (10)$$

Уравнения (10) для безразмерной функции F дают условие

$$dF(0)/d\xi=-q_mH_0/kT\lambda. \qquad (11)$$

Найдем решение уравнения (8) с условиями (9), (11). Интегрируя уравнение (8) один раз и используя условие (9), получаем

$$\frac{1}{2}\left(\frac{dF}{d\xi}\right)^2=\mathrm{ch}\,(F)-1, \qquad (12)$$

$$\mathrm{ch}\,(F_0)=\frac{1}{2}\left(\frac{q_mH_0}{kT\lambda}\right)^2+1, \qquad (13)$$

где $F_0=F(\xi=0)$. Интегрируя второй раз, получаем решение в виде

$$F(\xi)=2\ln\left[\frac{e^{F_0/2}+1+(e^{F_0/2}-1)e^{-\xi}}{e^{F_0/2}+1-(e^{F_0/2)}-1)e^{-\xi}}\right]. \qquad (14)$$

Для напряженности магнитного поля из (5), (14) имеем

$$\frac{dH}{d\xi}=-\frac{8\pi q_m n_0}{\lambda}\mathrm{sh}(F). \qquad (15)$$

Формула (15) позволяет численно рассчитать зависимость напряженности магнитного поля от расстояния до поверхности. Более простые формулы получаются в двух предельных случаях: $F < F_0 \ll 1$ и $F_0 > F \gg 1$. В первом случае, разлагая экспоненты с точностью до линейных членов, получаем решение в виде $F(\xi) = F_0 e^{-\xi}$. Тогда уравнение (15) дает

$$H(\xi) = H_0 - \frac{8\pi q_m n_0 F_0}{\lambda}\left(1 - e^{-\xi}\right), \qquad (16)$$

$$H(\infty) = \frac{H_0}{1 + \dfrac{4\pi q_m^2}{\Phi}}, \qquad (17)$$

откуда видно, что статическая магнитная проницаемость спинового льда равна

$$\mu = 1 + \frac{4\pi q_m^2}{\Phi} = 1 + \frac{2\sqrt{3}\pi m^2}{a^3 kT}. \qquad (18)$$

Как мы увидим ниже, линейное приближение справедливо только в случае слабых внешних магнитных полей порядка нескольких гауссов.

При сильных полях, используя условие $F_0 > F \gg 1$, для координатной зависимости напряженности магнитного поля получаем формулу

$$H(\xi) = H_0 - (8\pi q_m n_0/\lambda)\, e^{F_0/2}\frac{\xi}{\xi + 2e^{-F_0/2}}. \qquad (19)$$

При этом значение поля на бесконечности $H(\infty)$ определяется той же формулой (17). Таким образом, при сильных внешних полях зависимость напряженности магнитного поля сначала (вблизи поверхности) описывается формулой (19). Это происходит до тех пор, пока напряженность не становится достаточно малой для выполнения условия приближения слабых полей, которую обозначим как H_1. После этого зависимость напряженности становится экспоненциальной, типа формулы (16). Наконец, в глубине образца значение напряженности стремится к конечному значению, даваемому формулой (17). Это конечное значение напряженности магнитного поля в глубине образца есть прямое следствие указанной выше поляризации решетки при движении монополей. В аналогичной задаче об электростатической экранировке в реальном льду электрическое поле может быть экранировано полностью, так как там наряду с ионными дефектами присутствуют еще и дефекты Бъеррума, движение которых поляризует решетку в обратном направлении.

Оценим численные значения различных параметров и обсудим смысл полученных результатов. Для расстояния между ближайшими спинами возьмем $r_{nn} \approx 3.54 \cdot 10^{-8}$ см [11]. Тогда для расстояния между центрами ближайших тетраэдров получаем $a \approx 4.34 \cdot 10^{-8}$ см. Магнитный заряд равен $q_m = 2m/a \approx 4.27 \cdot 10^{-12}$ дин/Гс. Для проницаемости в случае применимости линейного приближения получаем выражение $\mu \approx 1 + 8.29/T$, то есть при температуре $T = 1$ К внешнее магнитное поле ослабляется в спиновом льду почти на порядок.

Далее, параметр $l = \lambda^{-1}$ имеет смысл длины экранирования слабого магнитного поля, экранирование которого описывается формулами (16), (17). Из уравнения (7) для нее получаем выражение

$$l = \frac{a}{2\sqrt{\mu}} \exp\left(\frac{\epsilon_0}{4kT}\right). \qquad (20)$$

Значение длины экранирования экспоненциально зависит от энергии образования пары монополей ϵ_0. Вклад в эту энергию вносят как константа обменного взаимодействия J, так и энергия, необходимая для разделения монополей на расстояния, много большие по сравнению с длиной a. Вычислять эту энергию требуется довольно точно ввиду экспоненциальной зависимости в (20). Более разумно использовать зависимость (20) для экспериментального измерения энергии образования пары монополей. Заметим, что рассматривать монополи как невзаимодействующие квазичастицы мы можем только при условии слабости магнитостатического взаимодействия между ними. Для этого равновесная концентрация монополей должна быть низкой, то есть $\epsilon_0/2kT \gg 1$. Возьмем для иллюстрации значение $\epsilon_0 \approx 25$ К. Тогда для длины экранирования при температуре $T = 1$ К получаем значение $l \approx 3.69 \cdot 10^{-6}$ см. При этом концентрация монополей равна $n_0 \approx 1.97 \cdot 10^{16}$ см$^{-3}$, и длина экранирования сравнивается со средним расстоянием между монополями $n_0^{-1/3} \approx 3.70 \cdot 10^{-6}$ см: то есть мы находимся на границе применимости представления о непрерывном распределении магнитного заряда.

Оценим условие применимости линейного приближения $F_0 \ll 1$. Из второго уравнения (12) имеем условие $H_0 \ll kT/q_m l \approx 8.75$ Гс (при $T = 1$ К). Таким образом, по порядку величины, введенное выше магнитное поле H_1 можно считать равным $H_1 \approx kT/q_m l$. Линейное приближение справедливо только для очень слабых магнитных полей, а для более сильных полей необходимо использовать общие формулы (12)–(14) или формулу (19). Длина экранирования сильного магнитного поля больше, чем длина экранирования слабого поля $l = \lambda^{-1}$.

В заключение отметим, что описание экранирования внешнего магнитного поля в терминах монополей формально эквивалентно описанию того же явления в терминах элементарных диполей. Разница заключается в сложности описания явления. Ориентации элементарных диполей сильно коррелированы в силу правила льда, и мы имеем дело с многочастичной сильно коррелированной системой. Нарушений правила, то есть монополей, значительно меньше, и при этом условии мы можем рассматривать их как невзаимодействующие квазичастицы. Такой подход является типичным в теории многочастичных систем с сильными корреляциями: вместо рассмотрения исходных взаимодействующих частиц рассматривать только невзаимодействующие возбуждения. По этой причине формулировка задачи на языке монополей проще, чем в терминах элементарных диполей.

1. M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow et al., Phys. Rev. Lett. **79**, 2554 (1997).
2. I. A. Ryzhkin, Solid State Commun. **52**, 49 (1984).
3. I. A. Ryzhkin, JETP **101**, 481 (2005).
4. C. Castelnovo, R. Moessner, and S. L. Sondhi, Nature **451**, 42 (2007).
5. S. T. Bramwell, S. R. Giblin, S. Calder et al., Nature **461**, 956 (2009).
6. T. Fennell, P. P. Deen, A. R. Wildes et al., Science **326**, 415 (2009).
7. D. J. Morris, D. A. Tennant, S. A. Grigera et al., Science **326**, 411 (2009).
8. H. Kadowaki, N. Doi, Y. Aoki et al., J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 103706 (2009).
9. C. Jaccard, Phys. Kondens. Mater. **3**, 99 (1964).
10. I. A. Ryzhkin and R. W. Whitworth, J. Phys.: Condens. Matter **9**, 395 (1997).
11. R. Siddharthan, B. S. Shastry, A. P. Ramirez et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 1854 (1999).