

О МАГНИТНОЙ РЕЛАКСАЦИИ В ПЕРХЛОРАТНЫХ ОКИСЛАХ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ МЕТАЛЛОВ

*И. А. Рыжкин**

*Институт физики твердого тела Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 16 декабря 2004 г.

Рассматривается теория магнитной релаксации в геометрически фрустрированных трехмерных магнетиках, которые могут быть описаны антиферромагнитной моделью Изинга. К таким магнетикам относится часть недавно синтезированных перхлоратных окислов редкоземельных металлов типа $Dy_2Ti_2O_7$, $Ho_2Ti_2O_7$, $Yb_2Ti_2O_7$. Предложена модель, основанная на аналогии между поведением спинов в изинговских магнетиках и протонов во льде. Фундаментальную роль в модели играют точечные магнитные дефекты, рассматриваемые как невзаимодействующие квазичастицы с определенными энергиями, подвижностями и эффективными магнитными зарядами. Магнитные дефекты играют такую же роль, как ионные дефекты в физике льда или электроны и дырки в полупроводниках. В рамках предложенной модели получена частотная и температурная зависимости магнитной восприимчивости.

PACS: 75.10.Nk, 75.30.Sg, 75.50.Ee, 75.50.Lk

1. ВВЕДЕНИЕ

Часть недавно синтезированных перхлоратных окислов редкоземельных металлов типа $Dy_2Ti_2O_7$, $Ho_2Ti_2O_7$, $Yb_2Ti_2O_7$ относится к классу геометрически фрустрированных антиферромагнетиков (ГФМ) [1]. Под последними понимаются магнетики с периодической магнитной решеткой, в которой невозможно удовлетворить всем условиям локального магнитного упорядочения одновременно. Впервые подобная физическая ситуация встретилась при изучении двумерной треугольной антиферромагнитной модели Изинга [2]. В этой модели правила магнитного упорядочения, требующие чтобы соседние спины имели противоположный знак, не могут быть одновременно удовлетворены из-за наличия замкнутых циклов с нечетным числом ближайших соседей (замкнутые циклы — правильные треугольники). В перхлоратных окислах редкоземельных металлов магнитные ионы редкоземельных металлов расположены в вершинах связанных правильных тетраэдров (рис. 1). Невозможность одновременного выполнения всех условий упорядочения или, иными словами, фрустрации приводит к вырождению основного состояния и

очень специфическому температурному поведению. При самых высоких температурах, когда $kT \gg J$ (где k — постоянная Больцмана, J — константа магнитного взаимодействия), можно пренебречь магнитным взаимодействием, и система спинов, очевидно, находится в парамагнитном состоянии. При более низких температурах, $kT \sim J$, энергией магнитного взаимодействия пренебречь нельзя, и движение спинов становится коррелированным. Однако эксперимент показывает, что спины по-прежнему ведут себя парамагнитным образом, в том смысле, что магнитная восприимчивость подчиняется закону Кюри, т.е. $\chi \propto 1/T$ [1, 3, 4]. Такое поведение системы спинов, сохраняющееся вплоть до самых низких температур $kT \ll J$, послужило основанием для возникновения термина «кооперативный парамагнетизм».

Как происходит переход от парамагнитного состояния к кооперативно парамагнитному состоянию, существуют ли упорядоченные состояния при самых низких температурах, каковы природа и свойства кооперативно парамагнитного состояния? Вот основные вопросы, возникающие при изучении ГФМ. Цель данной работы — теоретически рассмотреть процесс магнитной релаксации в таких трехмерных геометрически фрустрированных магнети-

*E-mail: ryzhkin@issp.ac.ru

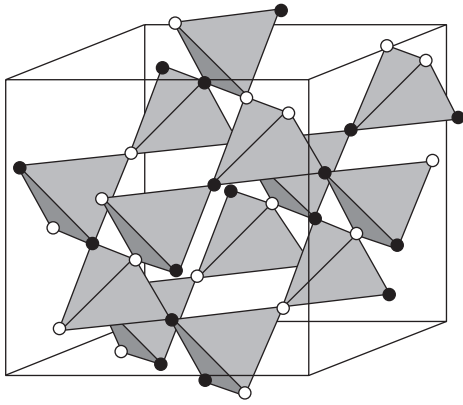


Рис. 1. Схематическое изображение магнитной решетки перхлоратных окислов редкоземельных металлов в виде трехмерной сетки правильных тетраэдров. Магнитные ионы расположены в вершинах правильных тетраэдров. Светлые и темные кружки обозначают ориентацию спинов к центру и от центра соответствующего тетраэдра

ках, которые могут быть описаны моделью Изинга. Более того, для определенности мы будем рассматривать вполне конкретный класс моделей, магнитная решетка которых состоит из трехмерной сетки связанных тетраэдров, центры которых образуют решетку типа алмаза (см. рис. 1). Именно к этому типу относятся перечисленные выше перхлоратные окислы. Мы покажем, что магнитное поведение таких систем может быть описано в рамках магнитного варианта теории, созданной некоторое время назад для описания поведения протонов во льде [5, 6]. Описание основывается на формальной аналогии между упорядочением в некоторых антиферромагнетиках и правилами льда, определяющими структуру протонной решетки льда, которая впервые была отмечена Андерсоном [7]. Впоследствии автор данной статьи, пытаясь объяснить происхождение правил льда, вывел гамильтониан, описывающий кулоновское взаимодействие протонов во льде, который формально полностью совпал с антиферромагнитным гамильтонианом Изинга [8, 9]. Правила льда при этом являлись очевидным следствием короткодействующей части кулоновского взаимодействия. Совпадение гамильтонианов означает глубокое сходство не только статических структур, но и всех, в том числе и динамических, процессов. В данной работе мы будем использовать эту аналогию для описания отклика системы на внешнее магнитное поле с произвольной временной зависимостью, т. е. магнитную релаксацию.

План дальнейшего изложения таков. В начале мы введем гамильтониан системы, опишем основное состояние, возбуждения и их свойства. Затем введем новую величину — конфигурационный вектор, который характеризует спиновое упорядочение и пропорционален локальной намагниченности, опишем взаимосвязь движения дефектов и конфигурационного вектора. В заключение мы получим формулы для частотнозависимой магнитной восприимчивости.

2. ОСНОВНОЕ СОСТОЯНИЕ И ДЕФЕКТЫ

Переходя к конкретному описанию модели, необходимо еще раз подчеркнуть, что наш подход основывается на вышеупомянутой аналогии между процессами в спиновой системе перхлоратных окислов редкоземельных металлов и в протонной системе обыкновенного льда. С этой точки зрения магнитная релаксация полностью аналогична электрической релаксации во льде, теория которой в основном была создана в работах [5, 10–12]. Наиболее изящная формулировка этой теории, основанная на использовании термодинамики необратимых процессов, была дана Жаккаром [5], а применения и соотношение с экспериментальными результатами детально описаны в работе [6]. Учитывая малодоступность процитированных работ и желая сделать изложение самодостаточным, ниже мы приведем довольно подробный вывод уравнений теории Жаккара, вместо простой ссылки на работу [5].

Далее следует отметить, что среди перхлоратных окислов редкоземельных металлов имеются материалы с антиферромагнитным гейзенберговским взаимодействием спинов. Эти материалы описываются антиферромагнитной моделью Гейзенберга, исходно являются фрустрированными, но не являются предметом исследования в данной работе.

Наиболее удивительно, что свойства фрустрированных магнетиков демонстрируют и другие перхлоратные окислы ($\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$), в которых исходное взаимодействие взаимодействия магнитных моментов является гейзенберговским и ферромагнитным, т. е. энергия взаимодействия пропорциональна $-\sigma_{i\alpha} \cdot \sigma_{j\beta}$. Оказалось, что в указанных материалах имеется сильная одноосная магнитная анизотропия с осями, направленными от центров тетраэдров к их вершинам. Поскольку косинус тетраэдрического угла равен $-1/3$, исходное взаимодействие становится эффективно антиферромагнитным и изинговским. По этой причине в качестве

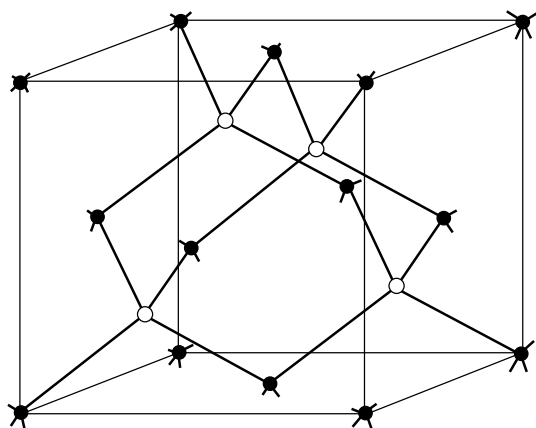


Рис. 2. Решетка, дуальная к решетке, изображенной на рис. 1. Она образована центрами тетраэдров и имеет структуру решетки алмаза. Светлыми и темными кружками обозначены две гранецентрированные подрешетки. В каждом узле сходятся четыре отрезка (связи), соединяющие ближайших соседей. Магнитные ионы расположены точно посередине связей, а оси магнитной анизотропии параллельны связям. Значения спина $\sigma = \pm 1$ соответствуют направлению магнитного момента от и к центрам тетраэдров, помеченных темными кружками

исходного гамильтониана для описания таких материалов можно взять антиферромагнитный гамильтониан Изинга [8, 9]:

$$H = \frac{J}{2} \sum_{nn} \sigma_{i\alpha} \sigma_{j\beta}, \quad (1)$$

где $J > 0$, индекс « i » нумерует заштрихованные тетраэдры, индекс $\alpha = 1 - 4$ нумерует спины внутри каждого тетраэдра, суммирование идет по всем парам ближайших соседей (см. рис. 1). Изинговские спины $\sigma_{i\alpha}$ принимают два значения ± 1 . В дальнейшем окажется удобным наряду с магнитной решеткой (рис. 1) ввести дуальную решетку, образованную центрами тетраэдров (см. рис. 2). Для перхлоратных окислов редкоземельных металлов дуальная решетка имеет структуру алмаза и состоит из двух взаимопроникающих гранецентрированных кубических подрешеток. Выбирая одну из них в качестве основной, можно сказать, что индекс « i » нумерует узлы этой подрешетки, а индекс « α » — середины связей с ближайшими соседями. Из каждого ее узла вдоль осей магнитной анизотропии или вдоль связей дуальной решетки можно провести четыре единичных вектора. Далее с учетом сказанного для определенности примем, что $\sigma_{i\alpha} = 1$, если магнитный мо-

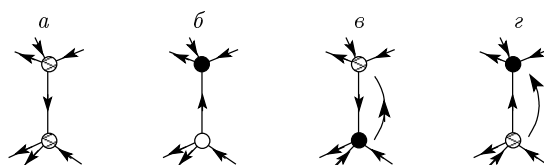


Рис. 3. Фрагмент магнитной решетки без магнитных дефектов (*a*), переворот спина на вертикальной связи, приводящий к образованию пары магнитных дефектов (*b*), переворот спина на вертикальной связи, приводящий к перемещению магнитного дефекта на межатомное расстояние вниз (*v*, *z*). Заштрихованные, темные и светлые кружки обозначают соответственно бездефектные узлы, положительные и отрицательные магнитные дефекты

мент спина параллелен соответствующему единичному вектору $e_{i\alpha}$, и $\sigma_{i\alpha} = -1$ в противоположном случае.

Для четырех спинов, образующих тетраэдр, основным состоянием является любая конфигурация с двумя положительными и двумя отрицательными спинами. Его энергия равна $-J$ на один спин и число таких конфигураций равно 6. Что можно сказать о кристалле, содержащем N тетраэдров? Очевидно, что состояние с наименьшей энергией достигается тогда, когда каждый тетраэдр находится в основном состоянии (энергию гамильтониана можно представить как сумму по тетраэдрам). Следовательно, энергия основного состояния кристалла равна $-J$ на один спин. Подсчитаем число таких состояний, следуя приближению Полинга [13]. Поскольку тетраэдр имеет всего 16 возможных конфигураций, доля конфигураций, обладающих наименьшей энергией, равна 6/16. Считая приближенно узлы независимыми, получаем, что доля основных состояний для всего кристалла равна $(3/8)^N$. Наконец, умножая эту долю на число всех спиновых конфигураций кристалла 2^{2N} , мы получаем приближенный результат Полинга для числа вырожденных основных состояний $w = (3/2)^N$.

Нетрудно увидеть, что любое из этих основных состояний при нулевой температуре является замороженным в том смысле, что невозможно изменить ориентацию какого-либо спина без увеличения энергии системы. При конечных же температурах возможен переворот произвольного спина, который приводит к увеличению энергии системы на величину $\epsilon_{\pm} = 4J$ и образованию двух неправильных конфигураций, схематически изображенных на рис. 3. Четыре смежных спина с тремя магнитными диполями, направленными к центру тетраэдра, и одним

диполем, направленным от центра, назовем положительным магнитным дефектом. Он является магнитным аналогом положительного ионного дефекта во льде. Соответственно, отрицательный магнитный дефект (три магнитных диполя от центра и один к центру) является аналогом отрицательного ионного дефекта. Спиновые конфигурации с дефектами уже не являются замороженными, так как в них возможны перевороты спинов без дальнейшего увеличения энергии. Действительно, как видно на рис. 3, переворот любого из трех одинаковых спинов магнитного дефекта эквивалентен перемещению дефекта на новый узел, что не сопровождается появлением новых дефектов и увеличением энергии. Последовательное повторение указанной процедуры приводит к дальнейшему перемещению дефектов. Принципиально важно, что движение дефектов по решетке переориентирует спины на всем пройденном пути. Именно этим обстоятельством объясняется фундаментальная роль дефектов в процессах магнитной релаксации. Дефекты играют роль квазичастиц, движение которых осуществляет переориентацию спинов. Именно наличие дефектов делает возможной магнитную релаксацию.

Важно подчеркнуть, что в описываемой модели энергия взаимодействия между дефектами обращается в нуль даже на межузельном расстоянии. Это является прямым следствием использования приближения ближайших соседей в гамильтониане (1). Возникает естественный вопрос об обоснованности такого приближения. Для обменного взаимодействия, которое быстро убывает с расстоянием, обоснованность приближения ближайших соседей не вызывает сомнения. Но, помимо обменного, в указанных материалах существует довольно значительное и медленно убывающее с расстоянием магнито-дипольное взаимодействие. И, казалось бы, это взаимодействие должно нарушить вырождение, свойственное модели ближайших соседей. Экспериментальный факт, однако, заключается в том, что такого нарушения нет: измеряемая остаточная энтропия близка к результату Полинга, отсутствуют упорядоченные структуры, численные расчеты показывают, что доля состояний с заметно различающейся энергией макроскопически мала. Аналогичная и даже более удивительная ситуация имеет место и в физике льда, где правила льда обусловлены короткодействующей частью кулоновского взаимодействия, а дальнедействующая часть по каким-то причинам не снимает вырождения. Несмотря на огромное количество работ по этой проблеме, до сих пор ее полное решение отсутствует (о последних ре-

зультатах см. [14]).

С другой стороны, даже при сравнительно медленном убывании взаимодействия между дефектами с расстоянием им можно пренебречь в области низких концентраций дефектов, что обычно имеет место. Но даже в этом случае отсутствия прямого взаимодействия во фрустрированных системах существует специфическое энтропийное взаимодействие, которое появляется в результате зависимости энтропии системы (фона) от расстояния между дефектами. Его зависимость от расстояния сводится к зависимости от расстояния корреляционных спиновых функций, которые для рассматриваемых моделей были фактически рассчитаны Нэглom [15]. Учитывая его результаты, можно утверждать, что энтропийное взаимодействие убывает быстрее прямого кулоновского взаимодействия и по этой причине может быть опущено. Подводя итог, можно сказать, что мы рассматриваем дефекты как невзаимодействующие частицы, подобные ионам в моделях решеточного газа, используемых для описания суперионных проводников. И подобно последнему случаю основным оправданием применения модели невзаимодействующих дефектов служат низкая плотность дефектов и результаты, которые согласуются с экспериментом.

Вычислим равновесную концентрацию дефектов. Для этого заметим, что каждый узел дуальной решетки может находиться в одном из 14 состояний: 6 бездефектных состояний, 4 ориентации положительного дефекта и 4 ориентации отрицательного дефекта. При этом мы пренебрегаем двумя состояниями с четырьмя спинами, направленными к узлу или от узла, считая, что им соответствует слишком высокая энергия. Обозначая число узлов, находящихся в этих состояниях, как N_i с $i = 1 - 14$, и считая сначала узлы независимыми, мы получаем для полного числа возможных конфигураций выражение $N!/\prod N_i$. В это число входят как согласованные конфигурации, т. е. конфигурации смежных узлов, приводящие к одинаковой ориентации спина на связи между ними, так и несогласованные, приводящие к противоположной ориентации. Очевидно, вторые ориентации должны быть исключены. В духе приближения Полинга будем считать, что вероятность получить согласованную связь равна $1/2$. Отсюда число согласованных конфигураций равно $w_{\pm} = (1/2)^{2N} N!/\prod N_i$ где $2N$ — число связей в кристалле. Считая, что дефекты рождаются парами и все ориентации дефектов равновероятны, $N_1 = \dots = N_6$, $N_7 = \dots = N_{14}$, мы обычным образом получаем для энтропии на один узел вы-

ражение $-k\{2x \ln x + (1 - 2x) \ln (2(1 - 2x)/3)\}$, где $x = N_{\pm}/N$ — концентрация дефектов, рассчитанная на один узел. Соответственно для свободной энергии на один узел имеем выражение

$$f(x) = \epsilon_{\pm} x + kT \times \left\{ 2x \ln x + (1 - 2x) \ln \left(\frac{2}{3}(1 - 2x) \right) \right\}. \quad (2)$$

Отсюда для равновесной концентрации дефектов получаем выражение

$$x_{\pm} = \frac{\frac{2}{3} \exp\left(-\frac{\epsilon_{\pm}}{2kT}\right)}{1 + \frac{4}{3} \exp\left(-\frac{\epsilon_{\pm}}{2kT}\right)}. \quad (3)$$

При низких температурах, которые чаще всего реализуются экспериментально, концентрации дефектов экспоненциально малы,

$$x_{\pm} \approx \frac{2}{3} \exp\left(-\frac{\epsilon_{\pm}}{2kT}\right).$$

При высоких температурах концентрации стремятся к конечному пределу $x_{\pm} \approx 2/7$.

3. МАГНИТНЫЕ ЗАРЯДЫ И ОСНОВНЫЕ УРАВНЕНИЯ

Покажем, что с магнитными дефектами могут быть связаны эффективные магнитные заряды. Для этого представим произвольную спиновую конфигурацию в виде суперпозиции пересекающихся струн, т. е. ломаных линий, состоящих из примыкающих друг к другу связей дуальной решетки, объединенных в струны таким образом, что магнитные моменты связей упорядочены вдоль направления обхода каждой струны. В бездефектных конфигурациях из каждых четырех спинов, примыкающих к каждой вершине дуальной решетки, два указывают на вершину, а два от нее. Это означает, что в таких конфигурациях струны могут быть либо замкнутыми, либо оканчиваться на поверхности кристалла. В конфигурациях же с дефектами струны могут оканчиваться внутри кристалла, причем их концы являются описанными выше магнитными дефектами.

В отношении создаваемого магнитного поля каждая струна магнитных диполей эквивалентна двум точечным магнитным зарядам, помещенным в ее концы, что может быть проверено прямым вычислением. Однако значительно проще использовать аналогию с макроскопической электростатикой. Действительно, для вычисления макроскопического магнитного поля внутри кристалла надо к

внешнему магнитному полю прибавить поле всех магнитных диполей. При этом в полной аналогии с макроскопической электростатикой можно утверждать, что последнее совпадает с полем, создаваемым зарядом с объемной плотностью $-\operatorname{div} \mathbf{M}$, где \mathbf{M} — плотность магнитного момента. Дивергенция намагниченности отлична от нуля только для узлов типа изображенных на рис. 3. Отсюда сделанное выше утверждение становится очевидным: с положительными дефектами связаны положительные магнитные заряды, а с отрицательными дефектами — отрицательные магнитные заряды.

Абсолютную величину магнитных зарядов дефектов можно выразить через магнитный момент спинов следующим образом. Рассмотрим движение положительного дефекта во внешнем магнитном поле на ближайший соседний узел дуальной решетки. Пусть расстояние между ближайшими узлами равно a . Поскольку движение дефекта заключается в перевороте одного спина, примыкающего к положительному дефекту, изменение энергии равно $\delta E = 2\mu H$, где H — напряженность внешнего магнитного поля, которое исходно направлено вдоль магнитного момента спина. Рассматривая этот же процесс как движение магнитного дефекта с зарядом m под действием силы $F = mH$, мы получаем для изменения энергии выражение $\delta E = mHa$. Сравнивая два определения, для магнитного заряда получаем $m = 2\mu/a$. Во избежание недоразумения подчеркнем, что в качестве определяющего соотношения мы берем отношение силы к напряженности магнитного поля. При этом магнитный заряд m имеет размерность Hm/A . Соответственно магнитный момент μ имеет размерность Hm^2/A , т. е. является кулоновским магнитным моментом. С амперовским магнитным моментом μ_a он связан соотношением $\mu = \mu_a \mu_0$, где μ_0 — магнитная проницаемость вакуума. Подчеркнем также, что магнитное поле спиновых диполей не сводится только к полю эффективных магнитных зарядов. Например, в однородно поляризованном образце размагничивающее поле, создаваемое магнитными моментами спинов, не равно нулю даже в отсутствие дефектов. Однако это размагничивающее поле может быть учтено обычным образом путем введения поверхностного поляризационного заряда.

Все сказанное выше является частью теоретической схемы, стремящейся интерпретировать магнитные дефекты как квазичастицы. Мы стремимся свести рассмотрение системы коррелированных спинов к рассмотрению только дефектов, исключив из рассмотрения спины всех узлов, находящихся в основных состояниях. Имеется, однако, очень

важное обстоятельство, отличающее рассматриваемые системы от обычных случаев введения квазичастиц. Дело в том, что основное и возбужденные состояния рассматриваемой системы бесконечнократно вырождены. Строго говоря, для полной идентификации этих состояний необходимо задать не только количество и положение магнитных дефектов, но и спиновую конфигурацию во всем кристалле. Для многих целей, однако, такая информация излишне подробна. Так, ниже мы покажем, что для описания магнитных явлений важно знать всего лишь одну векторную характеристику: конфигурационный вектор, пропорциональный локальной намагниченности. Любые конфигурации с одинаковой намагниченностью, но различной микроскопической спиновой структурой будут эквивалентны в отношении магнитных свойств. Учитывая это и следуя аналогии с физикой льда, введем конфигурационный вектор в виде [5, 16]

$$\mathbf{\Omega}(\mathbf{r}) = \frac{a}{2} \sum_{i\alpha} \sigma_{i\alpha} \frac{\mathbf{e}_{i\alpha}}{V}, \quad (4)$$

где суммирование ведется по всем спинам внутри физически бесконечно малого объема V около точки \mathbf{r} . Видно, что конфигурационный вектор пропорционален локальной намагниченности $\mathbf{\Omega} = \mathbf{M}/m$.

Другое, возможно еще более важное, значение конфигурационного вектора заключается в его связи с потоками дефектов. Для выяснения этой связи рассмотрим N_s спинов, расположенных в физически бесконечно малом объеме V , которые были параллельны единичному вектору \mathbf{e} и изменили свою ориентацию. В результате этого процесса изменение конфигурационного вектора равно $\delta\mathbf{\Omega} = -a\mathbf{e}N_s/V$. Поскольку каждый переворот спина означает смещение либо положительного дефекта на $\delta\mathbf{r}_+ = -a\mathbf{e}$, либо отрицательного на $\delta\mathbf{r}_- = a\mathbf{e}$, это же изменение конфигурационного вектора можно представить в виде $\delta\mathbf{\Omega} = \delta\mathbf{r}_+N_+ - \delta\mathbf{r}_-N_-$ (где N_{\pm} — числа положительных и отрицательных дефектов, изменивших свое положение в результате переворота спинов, $N_s = N_+ + N_-$). Отсюда для частной производной $\mathbf{\Omega}$ по времени получаем выражение $\partial\mathbf{\Omega}/\partial t = \mathbf{j}_1 - \mathbf{j}_2$, где $\mathbf{j}_{1,2} = \mathbf{v}_{\pm}N_{\pm}/V$ — соответственно плотности потоков положительных и отрицательных дефектов. В интегральной форме это соотношение имеет вид

$$\mathbf{\Omega}(t) - \mathbf{\Omega}(0) = \int_0^t (\mathbf{j}_1 - \mathbf{j}_2) dt'. \quad (5)$$

Заметим также, что детализация спиновой структуры заданием конфигурационного вектора несколько уменьшает остаточную энтропию системы. Как

показано в работе [16], это уменьшение может быть описано формулой

$$S_c(\mathbf{\Omega}) - S_c(0) = -\frac{4}{\sqrt{3}}ak|\mathbf{\Omega}|^2. \quad (6)$$

Уравнения (5), (6) позволяют найти выражения для потоков дефектов через внешнее магнитное поле и конфигурационный вектор. Для этой цели можно использовать стандартный метод термодинамики необратимых процессов, основанный на использовании выражения для локальной плотности производства энтропии [5]. В нашем случае это выражение может быть записано в следующем виде:

$$T\dot{S} = \sum_{i=1}^2 \mathbf{j}_i \cdot m_i\mathbf{H} + T\dot{S}_c, \quad (7)$$

где ± 1 соответствует положительным (отрицательным) дефектам, $m_{1,2} = \pm 2\mu/a$ — магнитные заряды дефектов. Первый член в уравнении (7) представляет работу, в единицу времени совершаемую внешним магнитным полем. Второй член связан с упомянутым выше упорядочивающим действием потоков дефектов. Подставляя уравнения (5), (6) в уравнение (7), получаем

$$T\dot{S} = \sum_{i=1}^2 \mathbf{j}_i \cdot (m_i\mathbf{H} - \eta_i\Phi\mathbf{\Omega}), \quad (8)$$

где $\eta_{1,2} = \pm 1$, $\Phi = (8/\sqrt{3})akT$. С другой стороны, эта же величина может быть записана через обобщенные движущие силы \mathbf{f}_i в виде $\sum \mathbf{j}_i \cdot \mathbf{f}_i$. Сравнивая две записи, получаем выражение для движущих сил:

$$\mathbf{f}_i = m_i\mathbf{H} - \eta_i\Phi\mathbf{\Omega}. \quad (9)$$

Второй член в этом выражении для обобщенной силы возникает благодаря упорядоченности спиновой структуры. Он показывает, что даже в отсутствие магнитного поля в частично упорядоченной решетке возникает поток дефектов. Эту часть обобщенной силы представляет энтропийный вклад, и она не связана с влиянием поля. Используя выражение для обобщенных сил и вводя подвижности μ_i и концентрации дефектов $n_i = x_iN$, мы можем написать выражение для потоков в следующем виде:

$$\mathbf{j}_i = \mu_i n_i (m_i\mathbf{H} - \eta_i\Phi\mathbf{\Omega}). \quad (10)$$

При этом пренебрежем недиагональными членами тензора кинетических коэффициентов, которые описывают влияние сил, действующих на дефекты одного вида, на потоки дефектов другого типа. Очевидно, что это члены второго порядка по плотности дефектов и они могут быть опущены в линейном приближении.

4. МАГНИТНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ

Уравнения (5), (10) образуют замкнутую систему и позволяют найти величины Ω и \mathbf{j}_i при произвольной зависимости внешнего магнитного поля от времени. Несмотря на свою простоту, они очень необычны, так как показывают, что плотности потоков в любой момент времени (см. (10)) зависят от их значений во все предыдущие моменты времени (см. (5)).

Используем полученные уравнения для нахождения частотной зависимости магнитной восприимчивости. Пусть к системе приложено однородное внешнее магнитное поле с временной зависимостью пропорциональной $\exp(-i\omega t)$. Распределение магнитных дефектов, несущих магнитный заряд, при этом останется однородным. Далее, так как все соотношения в нашей теории линейны, гармоническую зависимость от времени будут иметь все рассматриваемые величины. Следовательно, из уравнения (6) для фурье-образов получаем выражение

$$\Omega_\omega = (\mathbf{j}_{1\omega} - \mathbf{j}_{2\omega})/(-i\omega).$$

Далее, исключив из этого выражения $\mathbf{j}_{1\omega}, \mathbf{j}_{2\omega}$ с помощью уравнений (10), записанных в представлении Фурье, и учитывая связь конфигурационного вектора и намагнитченности, получаем для последней выражение

$$\mathbf{M}_\omega = \chi(\omega)\mathbf{H}_\omega, \quad \chi(\omega) = \frac{m^2/\Phi}{1 - i\omega\tau}, \quad (11)$$

где время релаксации τ определяется соотношением $\tau^{-1} = (\mu_1 n_1 + \mu_2 n_2)\Phi$, а низкочастотная магнитная восприимчивость равна $\chi(0) = (\sqrt{3}/2)(\mu^2/a^3)/kT$. Абсолютная величина восприимчивости в два раза выше, чем восприимчивость истинного парамагнетика при той же плотности и температуре. Подчеркнем, однако, что формула для кооперативного парамагнетика сохраняет силу до самых низких температур. По этой причине его восприимчивость может быть значительно выше. Оценим численные значения статической восприимчивости. Так, для перхлоратных окислов редкоземельных металлов при тем-

пературе $T = 10$ К, $\mu = g\mu_B$, $g \approx 9$, $a = 2 \cdot 10^{-10}$ получаем $\chi_a = \chi/\mu_0 \approx 7.5$. При этом мы учли также, что обычная безразмерная восприимчивость определяется через амперовский магнитный момент соотношением $\chi_a = M_a/H$.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение перечислим основные результаты работы и сделаем несколько замечаний о дальнейшем развитии теории. Во-первых, показано, что описание магнитных процессов в геометрически фрустрированных магнетиках может быть сведено к описанию концентраций, потоков дефектов (уравнения (3), (10)) и конфигурационного вектора (уравнение (5)). Во-вторых, найдена частотная зависимость магнитной восприимчивости, величина и температурная зависимость статической магнитной восприимчивости (уравнение (11)). Отметим также, что приведенный магнитный вариант теории Жаккара позволяет непосредственно перейти к рассмотрению целого ряда необычных магнитных явлений, аналогов которых могут быть найдены среди электрических явлений во льде: перенос магнитного заряда, экранировка магнитного поля и другие физические явления, связанные с существованием магнитного заряда дефектов.

Наконец, остановимся на ограничениях теории и возможных направлениях развития. В целях простоты выше мы предполагали, что плотности дефектов однородны и определяются формулой (3), что справедливо для однородных ситуаций. С учетом того, что магнитные дефекты рождаются парами, отсюда следует, что макроскопическая плотность магнитного заряда равна нулю, и магнитное поле — это внешнее магнитное поле. В неоднородных состояниях плотности дефектов становятся функциями координат, и для их определения требуются два новых уравнения. Так же как и в теории электрических свойств льда, они могут быть получены из уравнений непрерывности для потоков, соотношения (6) и магнитного аналога уравнения Пуассона [17].

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 01-02-16459).

ЛИТЕРАТУРА

1. A. P. Ramirez, *Annu. Rev. Mater. Sci.* **24**, 453 (1994).
2. G. N. Wannier, *Phys. Rev.* **79**, 357 (1950).

3. M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow, T. Zeiske, and K. W. Godfrey, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2554 (1997).
4. A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava, R. Siddharthan, and B. S. Shastry, *Nature* **399**, 333 (1999).
5. C. Jaccard, *J. Phys.: Condens. Mater.* **3**, 99 (1964).
6. V. F. Petrenko and R. W. Whitworth, *Physics of Ice*, Oxford University Press, Oxford (1999).
7. P. W. Anderson, *Phys. Rev.* **102**, 1008 (1956).
8. I. A. Ryzhkin, *Sol. St. Comm.* **52**, 49 (1984).
9. I. A. Ryzhkin, in *Physics and Chemistry of Ice*, ed. by N. Maeno and T. Hondoh, Hokkaido Univ. Press, Sapporo (1992), p. 141.
10. N. Bjerrum, *Kongelige Danske Videnskabernes Selskab Matemaisk-Fysiske Meddelelser* **27**, 1 (1951).
11. H. Granicher, C. Jaccard, P. Sherrer, and A. Steinemann, *Discussion Faraday Soc.* **23**, 50 (1957).
12. L. Onsager and M. Dupuis, in: *Termodinamica dei processi irreversibili, Rendiconti della Scuola Internazionale di Fisica «Enrico Fermi»*, Corso X, Varenna (1959), p. 294.
13. L. Pauling, *J. Amer. Chem. Soc.* **57**, 2680 (1935).
14. S. V. Isakov, R. Moessner, and S. L. Sondhi, E-print archives, cond-mat/0502137.
15. J. F. Nagle, *Chem. Phys.* **43**, 317 (1979).
16. I. A. Ryzhkin and R. W. Whitworth, *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, 395 (1997).
17. В. Ф. Петренко, И. А. Рыжкин, *ЖЭТФ* **87**, 558 (1984).