# MAGNETNI MONOPOLI V SPINSKEM LEDU

# IRIS ULČAKAR

Fakulteta za matematiko in fiziko Univerza v Ljubljani

Predstavljeni so kvazidelci z lastnostmi, podobnimi lastnostim magnetnih monopolov kot hipotetični osnovni delci. Kvazidelci nastanejo kot prve vzbuditve v kristalu spinskega ledu. Najprej so opisane lastnosti hipotetičnega magnetnega monopola. Sledi matematični opis osnovnega stanja sistema spinskega ledu in primerjava z vodnim ledom. Nato so opisane prve vzbuditve, njihova povezava z magnetnimi monopoli in merljive lastnosti, ki izhajajo iz takega opisa.

#### MAGNETIC MONOPOLES IN SPIN ICE

Quasiparticles with properties reminding that of the hypothetical magnetic monopole are presented. Quasiparticles emerge as the first excitations in a crystal of spin ice. First the properties of the hypothetical magnetic monopole in vacuum are described. A mathematical description of the ground state and its comparison to water ice follows. Finally a description of the first excitation, its connection to the magnetic monopoles and the measurable properties that arise from such description is given.

## 1. Uvod

V nasprotju s svojim električnim ekvivalentom v naravi še nismo opazili samostojnih magnetnih monopolov. Kljub vsem eksperimentalnim trudom, da bi opazili magnetizem, izvirajoč iz magnetnega naboja, se zdi, da magnetizem v naravi izhaja iz električnih nabojev s spinom ali tirno vrtilno količino. Najnižja stopnja magnetnega multipola, magnetni dipol, nastane kot posledica električne zanke, ki se je ne da razpoloviti. Severni in južni pol magneta sta torej neločljiva.

Pred desetimi leti [1] je skupina treh znanstvenikov pokazala, da se kvazidelci z lastnostmi magnetnega monopola pojavijo kot vzbuditve iz osnovnega stanja skupnih interakcij atomskih momentov v razredu eksotičnih materialov znanih kot "spinski led". Spinski led je bil odkrit le desetletje pred tem, pozornost pa si je zaslužil zaradi podobnosti z vodnim ledom pri nizkih temperaturah. Ta ima namreč zelo zanimivo lastnost pri ničelni temperaturi - vodikovi atomi ostanejo neurejeni, kar povzroči neničelno entropijo kristala. To je nakazal leta 1935 že Linus Pauling [2], leta 1956 [3] pa je Phillip Anderson napovedal, da se prav tako obnaša Isingov antiferomagnet na geometrijsko frustrirani piroklorni mreži. Tak sistem je bil odkrit šele 40 let kasneje [4] in se izkazal za veliko boljši laboratorij kot vodni led. V zadnjem desetletju je bil spinski led zelo dobro teoretično popisan, kar podpira vedno več eksperimentov; najpomembnejše, da ga pri nizkih temperaturah lahko opišemo z novimi prostostnimi stopnjami - magnetnimi monopoli, realnimi in otipljivimi kvazidelci. To so leta 2009 pokazali s sipanjem nevtronov, kjer se dobro vidi monopolna oblika jakosti magnetnega polja [5]. Preden se lotimo obravnave spinskega ledu, si oglejmo osnovne lastnosti hipotetičnega magnetnega monopola, ki ga napoveduje mnogo modernih teorij. Pri nadaljni obravnavi pa se zavedajmo, da navedeni eksperimenti niso dokaz obstoja magnetnih monopolov v vakuumu, temveč obstoja kvazidelcev s podobnimi lastnostmi kot magnetni monopoli v sistemu kondenzirane snovi. V seminarju bom najprej opisala hipotetičen osnovni delec, magnetni monopol, katerega obstoj napoveduje mnogo modernih fizikalnih teorij. Nato si bomo ogledali opis osnovnega stanja spinskega

ledu in njegovo podobnost z vodnim ledom. Sistemu bomo priredili nove prostostne stopnje, našli elementarne vzbuditve in si ogledali njihove lastnosti in poskuse, ki podpirajo tak opis pri nizkih temperaturah.

## 2. Magnetni monopol

Magnetni monopol je hipotetičen osnovni delec, ki ima en magnetni pol (severni ali južni) in katerega magnetizem je posledica magnetnega naboja. Prvi je obstoj magnetnih monopolov nakazal Paul Dirac leta 1931 [6], ko je pokazal, da bi bila posledica njihovega obstoja kvantizacija električnega naboja. Tega namreč uspešno ne razloži nobena druga teorija. Odtlej je obstoj bolj prepričljivo argumentrial velik nabor teorij, med njimi velika teorija poenotenja ("GUT") in teorija strun.

Klasične Maxwellove enačbe niso simetrične, obstoj gostote magnetnega naboja pa bi prinesel dualnost električnega in magnetnega polja, kjer zamenjava polj ne bi spremenila oblike enačb [7]

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho_e}{\epsilon_0} \qquad \qquad \nabla \cdot \mathbf{B} = \mu_0 c \rho_m \tag{1}$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} - \mu_o c \mathbf{j}_m \qquad \nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} - \mu_o \mathbf{j}_e. \tag{2}$$

Zgornji niz Maxwellovih enačb ohranja tako električni kot magnetni naboj

$$\frac{\partial \rho_e}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j}_e = 0 \qquad \qquad \frac{\partial \rho_m}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j}_m = 0. \tag{3}$$

Sedaj lahko s pomočjo enačb izpeljemo magnetno polje in njegov potencial za magnetni monopol, ki ga z gostoto magnetnega naboja opišemo kot delta funkcijo:  $\rho_m(\mathbf{r}) = q_m \delta^3(\mathbf{r})$ . Gostota magnetnega polja in vektorski potencial sta v sferičnih koordinatah  $(r, \theta, \phi)$  enaka [6]

$$\mathbf{B}(r) = \frac{\mu_0 c q_m}{4\pi r^2} \hat{\mathbf{e}}_r \qquad \mathbf{A}(r) = \frac{\mu_0 c q_m}{4\pi r} \tan \frac{\theta}{2} \hat{\mathbf{e}}_\phi. \tag{4}$$

Potencial ima poleg singularnosti v izhodišču tudi singularnost na osi  $\theta = \pi$ , ki je lahko poljubna za poljubno umeritev. Tej polneskončni osi singularnosti rečemo *Diracova struna*, in ta nam ponuja alternativen prisop k vpeljavi monopolov. Diracova struna je polneskončna tuljava, konec katere spominja na magnetni monopol, kakor kaže Slika 1. Taka definicija monopola je smiselna samo, če eksperimenti ne morejo zaznati prisotnosti infinitezimalno tanke tuljave [8]. Recimo, da želimo zaznati njeno prisotnost z interferenčnim poskusom tipa Bohm-Aharonov, sepravi da elektron po poljubni krivulji obkroži tuljavo in se vrne na začetno mesto. Če naj tuljave ne zaznamo, mora biti elektron na koncu v istem stanju z dodatkom trivialne faze

$$\exp\left[-i\frac{q_e}{\hbar}\oint \mathbf{A} \cdot d\mathbf{r}\right] = \exp\left[-i\frac{q_e q_m c\mu_0}{\hbar 4\pi}2\pi\right] = 1, \qquad n = 1, 2, 3...$$
(5)

Od tod tudi sledi kvantizacijsko pravilo za magnetni in električni naboj [7]:  $\frac{qeq_m C\mu_0}{4\pi\hbar} = n$ , kjer je n celo število. Čim v vesolju obstaja en sam magnetni naboj, je električni naboj že kvantiziran [9]. To je zaenkrat najbolj uspešen kandidat za razlago obstoja elementarnih električnih nabojev v naravi. Žal pa zaenkrat eksperimenti niso bili naklonjeni najdbi magnetnih monopolov. Ena razlaga za to je lahko, da imajo monopoli previsoko maso za detekcijo s trkalniki. Najbolj prepričljive teorije predvidevajo maso monopola večjo od  $10^{15}$  GeV in le nekaj drugih napove maso veliko nižje (~ 1 TeV). Ker je monopole očitno težko proizvesti, se moramo zanašati na to, da bodo spontano prileteli v detektor. Za prelet pa je verjetnost zelo majhna, saj bi tako masiven delec lahko nastal samo v zgodnjem vročem vesolju. Od takrat bi se velik delež parov monopol—antimonopol anihiliral. Do preleta detektorja je do sedaj morda prišlo le enkrat s superprevodnim detektorjem SQUID leta 1982 v eksperimentu, znanim kot "Stanford magnetic monopole search" [10]. Detektor je izmeril točno tako spremembo magnetnega pretoka (oziroma inducirani tok) kot je iz Maxwellovih enačb pričakovano za prehod monopola skozi detektor. Čeprav je skupina potrdila verodostojnost meritve, pa po tem dogodku nobenemu detektorju ni uspelo ponoviti takšne meritve.



**Slika 1.** Diracova vpeljava magnetnih monopolov: magnetni monopol je defekt na koncu infinitezimalno tanke polneskončne tuljave [11].

# 3. Spinski led

Spinski led je sistem magnetnih momentov, ki ležijo na piroklorni kristalni mreži. Piroklorno mrežo sestavljajo tetraedri, ki si delijo oglišča, na katerih ležijo magnetni dipoli, in se povezujejo v strukturo prikazano na Sliki 2. Spinski led lahko v prvem približku opišemo kot Isingov antiferomagnet na geometrijsko frustrirani kristalni mreži. Ta posplošitev je lahko zavajajoča, saj so osnovne interakcije med magnetnimi momenti feromagnetne in na dolgi doseg dipolne. Kljub temu se pri temperaturah nižjih od Curie-Weissove temperature ~ 2 K sistem magnetno ne uredi in nas pravzaprav spominja na Isingov antiferomagnet [12]. Kandidata za laboratorijske poskuse na spinskem ledu sta Dy<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> (disprozijev titanat) in Ho<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> (holmijev titanat) z magnetnimi ioni Dy<sup>3+</sup> in Ho<sup>3+</sup>, urejenimi na ogliščih tetraedrov v piroklorni mreži. Odkritje eksotičnih lastnosti spinskega ledu, kot je residualna entropija, je v zadnjih dveh desetletjih pritegnilo veliko pozornosti in spinski led je postal priljubljen laboratorij za opazovanje kvazidelcev in drugih nenavadnih pojavov pri nizkih temperaturah.



Slika 2. Magnetni momenti se nahajajo na piroklorni kristali mreži, ki jo sestavljajo tetraedri s skupnimi oglišči. Oglišča so hkrati tudi središčne točke vezi diamantne mreže (črne črte). Isingove osi so lokalne [111] smeri, ki kažejo v smereh diamantne mreže. Vezi piroklorne mreže so v smereh [110] in daljica, ki povezuje središčni točki nasproti ležečih piroklornih vezi, definira smeri [001] [12].

# 3.1 Vodni led, entropija in pravila ledu

Poleg feromagnetne in dipolne interakcije z velikostjo ~ 2 K posamezne momente na smer [111] veže močna anizotropija z velikostjo ~ 300K. Kombinacija obeh interakcij povzroči, da se sistem obnaša kot pseudospinski antiferomagnet: v osnovnem stanju dva momenta kažeta proti središču tetraedra in dva iz središča. Residualna entropija je posledica geometrijske frustacije takega antiferomagnetnega sistema. Ta pojav pa ni bil prvič opažen v spinskem ledu, temveč v obravnavi vodnega ledu leta 1936, ko sta Giauque in Stout v članku [13] sklenila, da je eksperimentalna vrednost entropije ledu pri ničelni temperaturi za 3.4 J/(mol K) večja od teoretične vrednosti za idealni plin. V članku sta poročala o meritvah vode s kalorimetrom na temperaturnem območju od 15 K do 273 K; entropijo sta izračunala z integracijo toplotne kapacitete (ulomljeno s temperaturo) in dodajanjem latentne toplote, za temperature nižje od 15K pa sta entropijo ekstrapolirala po Debyejevi metodi [14].

V trdnem stanju kisik v vodi s sosednjimi atomi kisika tvori tetraeder z medsebojno razdaljo ~ 2.76 Å. Okoli vsakega kisika se nahajata še dva vodika (protona) na razdalji ~ 0.96 Å, nahajata pa se na zveznici med "lastnim" kisikom (tistim, s katerim tvorita kovalentno vez) in sosednjim kisikovim atomom, s katerim tvorita relativno močno medmolekulsko vodikovo vez. Očitno se vodik ne nahaja točno na sredini O-O zveznice in bosta zanj možni postavitev "blizu" kisikovega atoma ali "daleč" od njega. Iz tega sledijo t.i. "*ice rules*" (pravila ledu) [14], ki določajo, da se morata v osnovnem stanju okoli kisikovega atoma dva protona nahajati blizu njega in dva daleč od njega. Posledično je v osnovnem stanju možnih več ugodnih konfiguracij protonov. Kasneje je Pauling pokazal, kako iz degenereacije osnovnih stanj dobimo skoraj točno enako residualno entropijo kot iz meritev. Ponudil je naslednji razmislek: Vzemimo N kisikovih anionov O<sup>-2</sup> in 2N protonov. Za vsako vez O-O sta možni dve postavitvi protona, kar za celoten sistem pomenti  $2^{2N}$  možnih stanj. Ampak za vsak kisik je od 16 možnih kofiguracij protonov takšnih z najmanjšo energijo le 6. Za celoten sistem je torej možnih

$$\Omega = 2^{2N} \left(\frac{6}{16}\right)^N \tag{6}$$

osnovnih stanj. Entropija osnovnega stanja je torej  $S/k_B = ln\Omega$ , kar za en proton pomeni  $S/k_BN_p = \frac{1}{2} \ln \frac{3}{2}$  [14, 15] in se zelo dobro ujema z eksperimentalno določeno entropijo.

Kot smo že omenili, za spinski led velja zelo podobno pravilo za osnovno stanje kot za vodni led, zato tudi temu pravilu rečemo pravilo ledu: dva momenta kažeta proti in dva iz središča tetraedra (to bomo kasneje pokazali). Po tej podobnosti, ki se jo vidi iz Slike 3a, je spinski led tudi dobil ime led. Zato bi morali kalorimetrijski poskusi pokazati točno enako residualno entropijo kot za vodni led, kar je bilo leta 1999 eksperimentalno pokazano [16]. Meritve entropije si lahko ogledamo na Sliki 3b. S tem so se poskusi z entropijo na geometrijsko frustriranih sistemih tudi zelo poenostavili, saj jih je lažje izvajati na sistemih spinskega ledu kot na izotropnem vodnem ledu, ki ga je zelo težko proizvesti.

Po opisu geometrijske frustracije na sistemu spinskega ledu in vodnega ledu lahko še razmislimo, zakaj je za piroklorno strukturo frustracija tako velika. Intuitivno si veliko frustracijo razložimo zaradi tetraederske strukture, za katero vemo, da ne obstaja optimalna antiferomagnetna ureditev. Degeneracijo osnovnega stanja lahko podamo z D - K [15], kjer je D skupno število prostostnih stopenj spinov, K pa število vezi, ki spine veže v osnovno stanje. Za največjo frustracijo sistema je pri fiksnem številu spinov potrebno znižati število vezi za osnovno stanje. V dvodimenzionalnih mrežah se to zgodi v kagome mrežah, kjer si trikotniki delijo oglišča. V taki mreži je degeneracija osnovnega stanja veliko večja kot v osnovni trikotni mreži (kjer si trikotniki delijo stranice). Po taki



Slika 3. a) Na levi je prikazan tetraeder kot osnovni strukturni gradnik spinskega ledu, na desni strani pa tak gradnik vodnega ledu. Podobnost med sistemoma je očitna [12]. b) Entropija izračunana iztoplotne kapacitete na območju 0.2 K do 14 K [12].

metodi štetja je v treh dimenzijah ali manj najbolj degenerirana mreža, ki je hkrati uresničljiva, taka kjer si tetraedri delijo oglišča, se pravi ravno piroklorna mreža.

## 3.2 Posplošitev interakcij in osnovno stanje

V prejšnjem poglavju smo privzeli, da za spinski led velja pravilo ledu, sedaj pa to še izpeljimo. Najprej se spomnimo, da spinski led opišemo kot sistem magnetnih momentov na piroklorni mreži, ki so omejeni na lokalno os [111] [12]. V snoveh, ki jih bomo obravnavali, Dy<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> in Ho<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> z nosilci magnetnega momenta Dy<sup>3+</sup> in Ho<sup>3+</sup>, je velikost magnetnega momenta  $\mu \approx 10\mu_B$  [1]. Z veliko natančnostjo termodinamične lastnosti spinskega ledu opišemo s feromagnetno interakcijo bližnjih sosedov in z dipolno interakcijo med momenti

$$H = \frac{J}{3} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \frac{\mu_0 \mu^2}{4\pi} \sum_{i < j} \left[ \frac{\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{S}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right],\tag{7}$$

kjer je J iymenjalna energija, magnetne momente smo zapisali kot:  $\mu_{\mathbf{i}} = \mu \mathbf{S}_i = \pm \mu \mathbf{e}_i$ ,  $\mathbf{e}_i$  pa kaže v lokalni kristalografski smeri [111] [12, 1, 17].

Sedaj bomo zgoraj opisano interakcijo aproksimirali in opisali s t.i. "dumbbell" metodo (dumbbell v angleščini pomeni ročica za dvigovanje uteži). Dipole v ogliščih tetraedrov aproksimiramo s parom monopol—antimonopol z nabojem  $\pm q_m$ , ki sta od oglišča oddaljena za d vsak v svojo smer na osi [111], kot je prikazano na Sliki 4. Tu je pomembno opozoriti, da je konstrukcija zaenkrat popolnoma matematična, z njo pa sistemu nismo spremenili števila prostostnih stopenj [12]. S to metodo smo hamiltonko iz vsote po  $N^2$  dipolnih členih spremenili v vsoto po  $4N^2$  monopolnih členih

$$H = \frac{\mu_0}{4\pi} \sum_{i < j} \frac{q_i q_j}{r_{ij}}.$$
 (8)

V enačbi  $q_i$  in  $q_j$  zavzameta vrednosti  $\pm q_m$ , i in j pa tečeta po monopolih.

Za razumevanje transformacije preverimo, ali se novi sistem res obnaša podobno kot stari. Do predfaktorja natančno se coulombska interakcija monopol—monopol med krajišči "ročic" (torej med monopoli) obnaša kot  $O(1/r^3)$  dipolna interakcija, le z manjšimi popravki. S tem smo poskrbeli



Slika 4. Na sliki a) sta prikazana dva sosednja tetraedra v spinskem ledu, v katerem dipoli upoštevajo pravilo ledu. V ogliščih se nahajajo magnetni mometni, ki kažejo noter ali ven iz tetraedra. Preslikava v metodo "ročic" je prikazana na sliki b), kjer smo dipole zamenjali s parom monopol—antimonopol. Na slikah c) in d) je prikazana preslikava za najnižje vzbujeno stanje sistema, ki ga dobimo z zasukom momenta na stičišču tetraedrov [12].

za prvotno dipolno interakcijo med momenti na dolge razdalje. Na krajših razdaljah so popravki velikosti  $O(1/r^5)$ , ki jih lahko omilimo na dva načina. Najprej si za razdaljo 2*d* med monopoloma izberemo razdaljo med središčema sosednjih tetraedrov  $a_d = \sqrt{\frac{3}{2}}a$ , če je *a* dolžina stranice tetraedra. S tem je določen tudi naboj monopolov  $q_m = \frac{\mu}{a_d}$ . Po drugi strani zdaj to povzroči prekrivanje med monopoli in moramo interakcijo popraviti v središčih tetraedrov

$$V = \begin{cases} \frac{\mu_0}{4\pi} \sum_{i < j} \frac{q_i q_j}{r_{ij}}, & r_{ij} \neq 0\\ v_0 q_i q_j, & r_{ij} = 0. \end{cases}$$
(9)

Z  $v_0$  nadomestimo divergent<br/>no coulombsko interakcijo v središču tetra<br/>edrov, konstanto pa lahko določimo, saj mora biti tam enaka interakciji dveh dipolov

$$v_0 \left(\frac{\mu}{a_d}\right)^2 = \frac{J\mu^2}{3} + \frac{4}{3} \left(1 + \sqrt{\frac{3}{2}}\right) D\mu^2, \qquad D = \frac{\mu_0}{4\pi a^3}, \tag{10}$$

kjer za J in D velja  $J\mu^2 \approx 3.72$ K in  $D\mu^2 \approx 1.41$ K.

Rezultat lahko predstavimo tudi drugače, s skupnim seštevkom nabojev v središčih tetraedrov  $\alpha$ ,  $Q_{\alpha} = \sum_{i \in \alpha} q_i = 0, \pm 2q_m$  ali  $\pm 4q_m$ . Hamiltonska funkcija sistema se prevede v končno obliko v metodi "ročic" [12]

$$H = \frac{\mu_0}{4\pi} \sum_{\alpha < \beta} \frac{Q_\alpha Q_\beta}{r_{\alpha\beta}} + \frac{v_0}{2} \sum_{\alpha} Q_\alpha^2.$$
(11)

Če nas izpeljava ni povsem prepričala, si oglejmo še izjemno ujemanje numerično izvrednostene energije spinskega ledu s teoretično Coulombovo energijo na Sliki 5. Energija sistema sklopljenih dipolov je torej enaka kot energija sistema monopolov, ki se nahajajo v središčih tetraedrov. Ta oblika energijske funkcije nam precej olajša iskanje osnovnega stanja, do katerega pridemo še v zadnjem koraku. Za  $v_0 \rightarrow \infty$  je sistem očitno v osnovnem stanju, če je neto naboj v središčih tetraedra

#### Magnetni monopoli v spinskem ledu

enak  $Q_{\alpha} = 0$ . To pa je točno ista zahteva kot za pravilo ledu: dva momenta kažeta proti središču in dva ven, kot je prikazano na Sliki 4. Če je vrednost  $v_0$  končna pa je pri nizkih temperaturah konfiguracija dipolov odvisna od velikosti obeh členov. V primeru Dy<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> in Ho<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> je  $v_0$ dovolj velik, da za osnovno stanje lahko res privzamemo veljavnost pravila ledu [12].



Slika 5. Primerjava Coulombove energije  $\frac{-\mu_0 q_m^2}{(4\pi r)}$  (neprekinjena črta, enačba (11) z neposrednim numeričnim izvrednotenjem monopolne interakcijske energije v spinskem ledu (enačba (7)) [1].

## 4. Magnetni monopoli kot osnovne vzbuditve spinskega ledu

Opisali smo magnetni sistem spinskega ledu in obravnavali visoko degeneracijo osnovnega stanja. Pokazali smo, da lahko interakcijsko energijo sistema z dovolj veliko natančnostjo prevedemo z dipolnih interakcij momentov vezanih na kristalografsko smer [111] na interakcije monopolov (ki so krajišča "ročic") v središčih tetraedrov. Za novo prostostno stopnjo lahko vzamemo neto magnetni naboj na diamantni mreži, ki povezuje središča tetraedrov.

Osnovno stanje spinskega ledu je, da v vsakem tetraederu kažeta dva dipola noter in dva ven. Prvo vzbuditev si zamislimo tako, da enega od teh dipolov obrnemo. V sosednjih tetraedrih, ki mejita na obrnjen dipol, se pojavita defekta v obliki presežka magnetnega naboja - dobita neto naboj  $\pm 2q_m$ . Prvo vzbujeno stanje tetraedra je torej, da trije dipoli kažejo noter in en ven ali pa obratno, kar si lahko ogledamo na Slikah 4(c, d). To stanje lahko zopet primerjamo z vodnim ledom in sicer z nastankom nabitih  $H_3O^+$  in  $OH^-$  ionov [18]. Defekta v sosednjih tetraedrih se lahko ločita z nadaljnim obračanjem dipolov skoraj brez dodajanja energije, saj pri obračanju ne nastajajo domenske stene. Prvotna tetraedra se vrneta v osnovno stanje (vključno z vsemi ostalimi tetraedri v verigi), tista na koncu verige pa sta v vzbujenem stanju, kar prikazuje Slika 6. Energija takih defektov pride iz enačbe (11)

$$E(r) = 2\frac{2v_0\mu^2}{a_d^2} + \frac{\mu_0}{4\pi}\frac{(2\mu/a_d)(-2\mu/a_d)}{r}.$$
(12)

To je vsota kreacijske energije za nastanek defektov  $\Delta = 2v_0\mu^2/a_d^2$  in magnetne Coulombove interakcije. Zaradi zadnjega člena je primerno defekta preimenovati v par monopol—antimonopol. Kvantitativni opis energije med monopoloma pokaže, da sta monopola dekonfinirana. V prvem približku monopoli svobodno migrirajo po diamantni mreži, veže pa jih Coulombova energija (gibanje monopolov je vseeno omejeno, kar bomo obravnavali kasneje). S tem se lokalna dipolna vzbuditev frakcionalizira: nastaneta dekonfinirana kvazidelca [1].



Slika 6. Par ločenih monopolov (velika rdeča in modra sfera). Veriga obrnjenih dipolov Diracova struna je osvetljena in skicirane so magnetne silnice [12].

V metodi "ročic" smo uvedli nove prostostne stopnje, ki so mikroskopski izvori magnetnega polja **B**, kar očitno krši klasično Maxwellovo enačbo  $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$ . Čeprav to ni bilo težavno v opisu osnovnega stanja, postane težavno za opis vzbujenega stanja. Zato se vrnemo v dipolen opis sistema. Za nastanek ločenih monopolov obrnemo verigo dipolov, ki povezuje tetraedra z defektoma. Relativno na začetno stanje smo vpeljali magnetno polje verige dipolov z dipolno gostoto  $-\frac{\mu}{a_d}$  na enoto dolžine [12]. Magnetno polje **B** je tako oblike polja para monopol—antimonopol z dodatkom pretoka po "Diracovi struni", ki par povezuje prek verige obrnjenih dipolov. Oblika **B** na koncu sploh ni več tako podobna monopolni, ker položaj Diracovih strun ni vedno točno določen (le v posebnih primerih je). Ime Diracova struna v sistemu spinskega ledu nas ne sme zavesti, saj se v osnovi razlikuje od neopazljive Diracove strune v Diracovi konstrukciji magnetnih monopolov. Ker je struna opazna, je ne veže kvantizacijsko pravilo (v Diracovi obliki):  $q_D = \frac{h}{\mu_{0e}}$ . Za Dy<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> je velikost naboja  $Q = 2q_m = \frac{2\mu}{a_d} \sim q_D/8000$  [12].  $q_m$  lahko celo zvezno spreminjamo s stiskanjem sistema in posledičnim spreminjanjem kvocienta  $\frac{\mu}{a_d}$ .

Navsezadnje pa lahko monopole prepoznamo kot izvore in ponore magnetizacije  $\mathbf{M}$  in jakosti magnetnega polja  $\mathbf{H}$  [12]. Na Sliki 4 vidimo, da vzbujeno stanje tetraedra sestavljajo trije noter (oziroma ven) obrnjeni dipoli, ki povzročijo lokalen ponor magnetizacije  $\mathbf{M}$ . Hkrati to v metodi "ročic" pomeni, da je v tetraedru presežek magnetnega naboja in središče tetraedra je lokalen izvor  $\mathbf{H}$ . V skladu s klasično Maxwellovo enačbo se divergenca gostote magnetnega polja ne spremeni  $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$ .

Vrnimo se na gibanje monopolov po mreži. Dinamika skokov je povezana z že obstoječimi Diracovimi strunami, ki prepovedujejo nekatere obrate dipolov brez prehoda na naslednje stopnje vzbuditev. Tako na primer pozitivnemu monopolu ne more po isti poti slediti drug pozitiven monopol. Tudi ena vzbuditev se ne more svobodno širiti, saj mora pri skoku na nov tetraeder, prejšnji zadoščati pravilu ledu. Na primer vzbujen tetraeder ima 3 dipole noter in 1 ven - ko skoči na novega lahko v natanko 3 izmed 4 sosednjih tetraedrov, saj bi skok na prepovedanega za sabo pustil tetraeder s 4 dipoli obrnjenimi proti središču.

# 4.1 Plazemski opis

Vzbuditve spinskega ledu so torej defekti, ki kršijo pravila ledu, in jih opišemo kot monopolne izvore polja  $\mathbf{H}$ , ki kažejo Coulombovo privlačno silo in lahko proizvedejo inducirano električno

napetost tako, kot bi ga hipotetični elementarni monopoli. To pomeni, da bi za detekcijo monopolov lahko izvajali poskus s SQUID, a več o tem pri obravnavi detekcije monopolov. Sistem monopolov nasprotnih predznakov pa je že dolgo poznan in sicer ga za nizke gostote (in s tem temperature) lahko opišemo kot dvokomponentno plazmo, za katero poznamo fazni diagram n(T) (n je brezdimenzijska gostota), ki je prikazan na Sliki 7. Fazni diagram prikazuje plinasto in kapljevinasto fazo ter njuno koeksistenco. Iz meritev vemo, da spinski led pri ohladitvi iz "visokotemperaturne" paramagnetne faze ne doživi faznega prehoda in se vedno obnaša kot plin (seveda pod kritično temperaturo). Pri nizkih temperaturah gostota monopolov pada kot  $n \sim e^{\Delta/(k_B T)}$ , kjer je  $\Delta$  kreacijska energija para, pri visokih temperaturah pa moč interakcije v plazemskem modelu pada kot  $\frac{1}{T}$ . Taka oblika odvisnosti je bila tudi izmerjena. Statistiko redke plazme opisuje Debye—Hückelova teorija, s katero lahko zelo dobro modeliramo eksperimentalne meritve [12].

Plazemski opis lahko razširimo, če v sistem uvedemo zunanje magnetno polje v smeri [111]. Namesto brezmonopolne konfiguracije 2-noter 2-ven dipolov je preferirana konfiguracija 3-noter 1ven (ali obratno). To si lahko zopet ogledamo na sliki (6). Gostota monopolov je tedaj velika, kar je analogno kapljevini. Dobili smo torej fazni diagram H(T) z možnimi faznimi prehodi za spinski led. Tudi o tem bomo več povedali pri obravnavi detekcije monopolov.



Slika 7. Skica faznega diagrama dvokomponentne plazme. V odsotnosti zunanjega magnetnega polja spinski led pri ohlajanju ves čas ostane v plinskem režimu in opiše črtkasto pot v faznem diagramu [12].

# 4.2 Dinamika

Do sedaj smo opisovali nizkotemperaturno statistiko in termodinamiko spinskega ledu. V tem podpoglavju se posvetimo dinamiki v ravnovesju sistema, pri tem pa se zavedajmo, da je dinamiko sistema veliko težje opisati, zato se simulacije ne ujemajo tako dobro z eksperimentalnimi dejstvi kot pri prejšnjih opisih.

Začnimo s pomembno empirično opazko. Relaksacijski čas v spinskem ledu se z limito  $T \rightarrow 0$ nenavadno hitro daljša in sistem pod 600 mK na laboratorijski časovni skali ni več v ravnovesju. Hkrati opazimo tudi, da ni znatnega gibanja v degeneriranem osnovnem stanju, s čimer je mišljeno obračanje dipolov v zaključenih verigah (na primer šestkotnikih) [12]. Zaenkrat najboljše rezultate za temperature pod ~ 12 K dosežemo s stohastičnim Monte Carlo procesom, v katerem se vsak spin vsako milisekundo poskuša obrniti - frekvenca poskušanja je temperaturno relativno neodvisna. Posledično je kreacijski čas lahko zelo dolg, čeprav je gibanje že obstoječih monopolov hitro.

Idealno za opazovanje dinamike bi bilo, da bi izmerili frekvenčno odvisnost spinske korelacijske funkcije pri nizkih temperaturah. V naslednjem poglavju si bomo pogledali eksperimentalne meri-

tve in najboljše numerične približke, v tem poglavju pa bomo našli analitični prvi približek za opis obnašanja sistema monopolov. Vseeno si poglejmo hitro rast releksacijskega časa z nižanjem temperature (10), ki smo ga že omenili. Rast je celo hitrejša od eksponentnega, analitično pa jo bomo opisali le kot eksponentno rast. Sistem obravnavamo kot difuzijo monopolov in gledamo relaksacijo magnetizacije z gibanjem monopolov (zanima nas torej, kako hitro doseže sistem ravnovesje)

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = \mathbf{j}_{\mathbf{m}} \qquad \qquad \mathbf{j}_{\mathbf{m}} = -2\mu n \Phi \mathbf{M}, \tag{13}$$

kjer je druga enačba konstitutivna, **M** je magnetizacija,  $\mathbf{j_m}$  je gostota magnetnega toka,  $\mu$  in n sta mobilnost in gostota monopolov ter  $\Phi = \frac{8}{\sqrt{3}}ak_BT$ . Enačba za  $\mathbf{j_m}$  je eksponentna (Arrheniusov zakon) [17] z relaksacijskim časom [12]

$$\tau \sim \frac{1}{2\mu n\Phi},\tag{14}$$

ki zaradi nižanja gostote monopolov pri nizkih temperaturah divergira kot  $e^{\Delta/(k_B T)}$ . Metodo lahko popravimo z vključitvijo coulombske interakcije.

Opazovali in modelirali bi lahko tudi izvenravnovesno dinamiko, kjer bi sistem iz višje temperature nenadoma spustili na primerno temperaturo za opazovanje monopolov. Ta proces je veliko težje opisati, saj moramo poleg difuzije všteti še anihilacijske procese, ki lahko postanejo zelo zapleteni. Na primer, z nižanjem temperature lahko pride do ujetja - monopol in antimonopol sta v sosednjem tetraedru, ampak obrat dipola bi kršil željeno pravilo ledu in ustvaril še večji defekt. Monopola loči Coulombova bariera, zato se ne moreta po drugi poti anihilirati in sta ujeta.

## 5. Poskusi detekcije monopolov

V prejšnjem poglavju smo opisali lastnosti elementarnih vzbuditev spinskega ledu. Kar veliko eksperimentov, ki jih bomo obravnavali v tem poglavju, potrdi da so za nizke temperature nove prostostne stopnje res monopoli na diamantni mreži.

Zdi se, da bi bila detekcija prisotnosti monopolov lahko enostavna s poskusom s SQUID. Na ta način izmeri naprava spremembo magnetnega pretoka in inducirano napetost (in s tem električni tok) v superprevodnikovem obročku ob prehodu monopola. Za uspeh bi moral v nekem trenutku detektor preleteti le en monopol, tako redek plin monopolov pa dobimo pri zelo nizkih temperaturah, kjer smo se že prepričali, da je dinamika zelo počasna. Poleg tega je osnovni naboj monopola zelo majhen in bi se lahko izgubil v naključnih fluktuacijah induciranega toka v detektorju [18].

Naslednja neposredna metoda bi bila detekcija Diracovih strun kot nosilcev magnetnih monopolov. V odsotnosti magnetnega polja verige obrnjenih dipolov ne moremo enolično prepoznati, saj ne poznamo osnovnega stanja, tako da bi lahko opazovali odklon od tega stanja. Morris [5] je s sodelavci našel eleganten način opazovanja: spinski led postavimo v zunanje magnetno polje v smeri [001]. Saturiran sistem ima edinstveno konfigracijo, kjer imajo vsi dipoli pozitivno projekcijo na direktor magnetnega polja. S tem je minimizirana Zeemanova energija, hkrati pa niso kršena pravila ledu. Pri eksperimentu se pri nižanju intenzitete magnetnega polja ustvari redek plin parov, ki so povezani s končnimi Diracovimi strunami, definiranimi glede na začetno osnovno stanje. Strune se morajo monotono raztezati v smeri [001], lahko pa grejo malo levo in desno. Diracovo struno lahko opazimo z nevtronskim sipanjem, saj poznamo osnovno stanje sistema. Nevtroni so električno nevtralni, zato prodrejo globlje v spinski led). Sipalno sliko modeliramo kot naključni sprehod v ravnini xy, čas pa predstavlja os z. Iščemo torej verjetnost, da v 2D naključnem sprehodu iz začetnega izhodišča po času z pride v točko (x,y). Slika ima karakterističnen stožičast vzorec intenzitete v k prostoru. Meritve in simulacija se odlično ujemata, kot vidimo na Sliki 8.



Slika 8. a) Meritve nevtronskega sipanja v zunanjem magnetnem polju v smeri [001] z značilnim stožičastim vzorcem pri Braggovem vrhu (020) v primerjavi z b) rezultati računa z modelom 2D naključnih sprehodov [5, 12].

Statistična opisa, ki potrdita primernost modeliranja z novimi prostostnimi stopnjami, izvirata iz plazemskega opisa monopolov. Meritve toplotne kapacitete [5] primerjamo z izračunanimi iz Debye—Hückelove teorije. Ta metoda je dobra za nizke temperature, ko so monopoli redki. Pri višjih temperaturah se spinski led spremeni v običajen paramagnet in monopolni opis ne deluje več dobro. Tako obnašanje prikazuje Slika 9a.

Omenili smo tudi, da z zunanjim magnetnim poljem v smeri [111] lahko kontroliramo gostoto magnetnih monopolov. Zato dobimo v sliki H(T) pri nizkih temperaturah fazni prehod 1. reda med plinom in kapljevino, ki se konča v kritični točki. Skupina z Moessnerjem in Castelnovom je fazni diagram simulirala kar iz dipolne interakcijske energije (enačba 7) in dobila zelo dobro ujemanje z eksperimentalnimi meritvami. Tudi v poljski odvisnosti magnetizacije je zelo očiten nezvezni skok za nizke temperature in zveznost pri višjih (Slika 9b).



Slika 9. a) Izmerjena molska toplotna kapaciteta spinskega ledu -  $Dy_2Ti_2O_7$  brez zunanjega magnetnega polja v primerjavi z Debye—Hückelovo teorijo za monopole (modra črta) in najboljšim fitom za toplotno kapaciteto enega tetraedra (oranžna črta). Modro ozadje predstavlja režim spinskega ledu, rumeno pa paramagnetni režim [5]. b) Fazni diagram spinskega ledu kot funkcija temperature v zunanjem magnetnem polju [111]. Notranja slika prikazuje obnašanje magnetizacije v odvisnosti od gostote magnetnega polja pod in nad kritično temperaturo [12].

Oglejmo si še zadnji eksperiment, ki pa se navezuje na dinamično sliko spinskega ledu. Jaubert in Holdsworth [17] sta izboljšala difuzni analitični približek relaksacijskega časa v odvisnosti od temperature. Algoritem zopet uporabi monopole kot osnovne prostostne stopnje, dinamika pa je opisana v okviru velekanoničnega ansambla v mreži Diracovih strun. V simulacijo je v nasprotju s prejšnim opisom vključen tudi coulombski potencial med monopoli, ki je ključen za uspeh rezultatov, prikazanih na Sliki 10. Merske podatke dobimo na podlagi frekvenčne odvisnosti susceptibilnosti za različne temperature: susceptibilnost ima vrh pri določeni frekvenci, katere inverz ustreza relaksacijskemu času [19]. Metoda na veliko večjem območju dobro opiše sistem kot prejšnja analitična rešitev. Skupina je v metodi uporabila karakteristični temperaturno neodvisni čas za poskus obrata dipola in z uspehom metode pokazala, da bo tak opis primeren tudi v nadalje.



Slika 10. Relaksacijski čas kot funkcija temperature iz merskih podatkov (sivi križci in prekinjena črta). Arheniusov zakon za difuzijo (rdeča črta) za nizke temperature ni dober model. Nasprotno se relaksacijski časi dobljeni iz Monte Carlo avtokorelacijske funkcije (modri krožci) kar dobro ujemajo z meritvami tudi pri nizki temperaturi [17].

## 6. Zaključek

Opis in simulacija dinamike ponujata najbolj prepričljiv dokaz, da se pri nizkih temperaturah spinski led res obnaša kot vakuum, ki gostuje magnetne monopole kot vzbuditve kompleksnega sistema magnetnih interakcij na frustrirani kristalni mreži. Kljub uspehom Jauberta in Holdswortha pa raziskovanja na področju dinamike spinskega ledu še zdavnaj ni konec. Najnovejše meritve kažejo še hitrejše naraščanje releksacijskega časa pri padanju temperature kot je bilo prej izmerjeno. Zaenkrat še ni jasno, kateri mehanizem uspešno opiše izredno naraščanje, ampak izziv je stimuliral nove in razburljive raziskave na področju spinskega ledu. Spinski led je hkrati postal referenčni laboratorij za obvladljivo in počasno dinamiko ter edini trodimenzionalni sistem za opazovanje obnašanja frakcionalizirane topološke spinske tekočine. Veliko vprašanje za področje pa je, ali bodo lahko spoznanja glede klasišnega spinskega ledu uporabna za opis kvantnomehanskega sistema: Kaj je kvantna coulombska tekočina in kako narava elementarnih frakcionalnih vzbuditev vpliva na relaksacijske lastnosti? Zopet bo za modeliranje in razumevanje tokrat kvantnega sistema potreben učinkovit opis novih prostostnih stopenj.

## Zahvala

Za pomoč bi se rada zahvalila mentorju dr. Martinu Klanjšku.

#### LITERATURA

- [1] C. Castelnovo, R. Moessner, S. L. Sondhi, Magnetic monopoles in spin ice, Nature 451, 42 (2008).
- [2] L. Pauling, The Structure and Entropy of Ice and of Other Crystals with Some Randomness of Atomic Arrangement, Journal of the American Chemical Society 57 (12), 2680 (1935).
- [3] P. W. Anderson, Ordering and Antiferromagnetism in Ferrites, Phys. Rev. B 102, 1008 (1956).
- [4] M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow, T. Zeiske, and K. W. Godfrey, Geometrical Frustration in the Ferromagnetic Pyrochlore Ho<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, Phys. Rev. B 79, 2554 (1997).
- [5] D.J.P. Morris, D.A. Tennant, S.A. Grigera, B. Klemke, C. Castelnovo, R. Moessner, C. Czternasty, M. Meissner, K.C. Rule, J.-U. Hoffmann, K. Kiefer, S. Gerischer, D. Slobinsky, R.S. Perry, *Dirac Strings and Magnetic Monopoles in Spin Ice Dy2Ti2O7*, Science **326**, 411 (2009).
- [6] P.A.M. Dirac, Quantised Singularities in the Electromagnetic Field, Proc. Roy. Soc. A 133, 60 (1931).
- [7] R. Podgornik, A. Vilfan, *Elektromagnetno polje*, DMFA, Ljubljana, 2012.
- [8] J. Preskil, Magnetic Monopoles, Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. 34, 461 (1984).
- [9] R. Littlejohn: Lecture notes, http://bohr.physics.berkeley.edu/classes/221/0708/lectures/Lecture.2007.10.11.pdf.
- [10] B. Cabrera, First Results from a Superconductive Detector for Moving Magnetic Monopoles, Phys. Rev. Lett. 48, 1378 (1982).
- [11] T. Whyntie: Dirac's Magnetic Monopole (figure), https://zenodo.org/record/215523#.WvMOnYiFOF4.
- [12] C. Castelnovo, R. Moessner, and S.L. Sondhi, Spin Ice, Fractionalization, and Topological Order, Annu. Rev. Condens.Matter Phys. 3, 35 (2012).
- [13] W. F. Giauque, J. W. Stout, The Entropy of Water and the Third Law of Thermodynamics. The Heat Capacity of Ice from 15 to 273°K., Journal of the American Chemical Society 58 (7), 1144 (1936).
- [14] Wikipedia: Geometrical frustration, https://en.wikipedia.org/wiki/Geometrical\_frustration.
- [15] R. Moessner, A. P. Ramirez, Geometrical Frustration, Physics Today 59 (2), 24 (2006).
- [16] A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava, R. Siddharthan, B. S. Shastry, Zero-point entropy in 'spin ice', Nature 399, 333 (1999).
- [17] L. D. C. Jaubert and P. C.W. Holdsworth, Signature of magnetic monopole and Dirac string dynamics in spin ice, Nature Physics 5, 258 (2009).
- [18] M. Wilson, Elementary excitations in spin ice take the form of magnetic monopoles, Physics Today 61 (3), 16 (2008).
- [19] J. Snyder, Low-temperature spin freezing in the Dy2Ti2O7 spin ice, Phys. Rev. B 69, 064414 (2004).