

Неэкстенсивность энтропии и негауссово распределение намагниченности в двумерном спиновом льде

М. И. Рыжкин¹⁾

Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 2 сентября 2013 г.

В работе изучаются статистические свойства намагниченности конечных кластеров двумерного спинового льда. Методом имитации Монте-Карло показано, что короткодействующие правила льда в двух измерениях приводят к дальнедействующим корреляциям, убывающим с расстоянием степенным образом. Дальнедействующие корреляции, в свою очередь, являются причиной неэкстенсивности энтропии и неприменимости центральной предельной теоремы для намагниченности. Поведение моментов и функции распределения намагниченности в зависимости от размеров кластера не согласуется с теоретическими предсказаниями дипольного поведения корреляционных функций в двумерном спиновом льде.

DOI: 10.7868/S0370274X13210042

Первоначально название “спиновый лед” было дано соединениям типа $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [1]. Магнитные ионы в них находятся в вершинах трехмерной сетки правильных тетраэдров, связанных в трехмерную сеть, и образуют решетку типа пирохлора. Благодаря сильной анизотропии магнитные моменты могут быть направлены либо к центру каждого тетраэдра, либо от его центра. В основном состоянии ориентации моментов удовлетворяют правилу льда: два момента направлены к центру и два – от центра. Это соответствует распределению электрических дипольных моментов водородных связей в обыкновенном льде (твердая фаза воды в природных условиях). Отсюда и возник термин “спиновый лед”.

Впоследствии спиновым льдом стали называть любые двумерные и трехмерные системы, в которых магнитные моменты (далее просто спины) распределены в соответствии с правилом льда. Спиновый лед является магнитным аналогом обыкновенного льда и классическим аналогом спиновой жидкости [2]. Он проявляет целый ряд необычных физических свойств: отсутствие упорядочения до самых низких температур [1], экспоненциальное вырождение основного состояния [3], степенное (дипольное) убывание корреляционных функций с расстоянием [4–6], существование квазичастиц с эффективным магнитным зарядом (магнитных монополей) [7, 8].

Одной из реализаций спинового льда является система ферромагнитных островков на поверхности кремния, называемая двумерным спиновым льдом

или искусственным спиновым льдом [9]. Структура и параметры системы выбираются такими, чтобы магнитное взаимодействие между островками было фрустрированным. Следствием этого и являются правила льда, которые определяют магнитное упорядочение. Данная система предоставляет уникальные возможности локального воздействия на отдельные магнитные моменты и локального анализа упорядочения. Фактически она является лабораторией по изучению фрустрированных магнитных систем и всех их особых свойств. С другой стороны, двумерный спиновый лед очень близок к простым теоретическим моделям, допускающим точное решение [10–13]. Наличие экспериментальных реализаций и точных решений делает спиновый лед своеобразным испытательным полигоном и для отладки различных алгоритмов метода Монте-Карло.

Последнее объясняет цель данной работы. Это отладка нового алгоритма перебора спиновых конфигураций для метода Монте-Карло и исследование статистических свойств намагниченности кластеров двумерного спинового льда в зависимости от числа спинов в кластере.

Модель двумерного спинового льда изображена на рис. 1. Изинговские спины могут быть направлены влево/вправо на горизонтальных и вверх/вниз на вертикальных связях. Для каждой вершины спины, примыкающие к ней, направлены согласно правилу льда: два в вершину и два из вершины. Все вершины, удовлетворяющие правилу льда, обладают одинаковым статистическим весом или одинаковой энергией. Нарушения правила льда, т.е. вершины с тремя спи-

¹⁾e-mail: ryzhkin@bk.ru

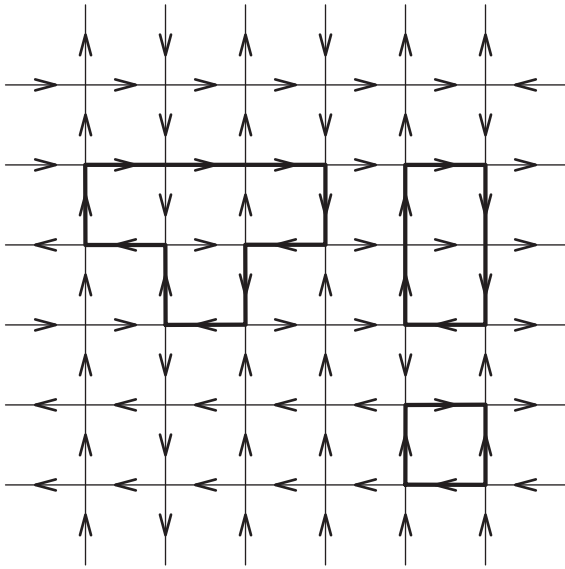


Рис. 1. Модель двумерного спинового льда. Изинговские спины располагаются на связях и могут быть ориентированы вдоль них. В основном состоянии в каждой вершине два спина направлены к вершине и два – от вершины (правило льда)

нами (одним спином) внутрь и одним спином (тремя спинами) наружу, имеют наименьшую энергию возбуждения и несут эффективный магнитный заряд. Обычный алгоритм порождения спиновых конфигураций путем переворота одного спина [14] при применении к моделям типа льда является экспоненциально неэффективным при низких температурах. Действительно, из рис. 1 видно, что любой переворот отдельного спина в конфигурации основного состояния приводит к нарушению правила льда, т.е. к возрастанию энергии на конечную величину, и, следовательно, к экспоненциальному росту времени имитации с понижением температуры. Для изучения же свойств основного состояния данный метод непригоден полностью.

Для того чтобы обойти эту трудность, были разработаны специальные алгоритмы, реализующие одновременный переворот множества спинов, который обеспечивает преодоление барьеров энергии [15–18]. В применении к рассматриваемой модели подобные алгоритмы сводятся к выделению циклов, содержащих спины, ориентированные по циклу, и к их одновременному перевороту (см. циклы, помеченные жирными линиями на рис. 1). Такие перевороты не нарушают правил льда и сильно сокращают время Монте-Карло имитации. Однако и они не решают проблему. Дело в том, что пространство спиновых конфигураций имеет очень сложную структуру. Оно

фактически разбито на топологические секторы, переходы между которыми затруднены [19]. В частности, они не реализуемы вышеупомянутыми алгоритмами. Это утверждение становится очевидным, если заметить, что переворот всех спинов цикла (замкнутого контура с ориентацией спинов вдоль контура) не меняет намагниченности. Следовательно, используя такие алгоритмы, невозможно покинуть пределы сектора с заданным значением намагниченности.

С учетом сказанного мы планировали проверку нового алгоритма порождения конфигураций. Он состоит из двух шагов и порождает конфигурации, более равномерно распределенные по конфигурационному пространству. На первом шаге этого алгоритма задается совершенно случайная спиновая конфигурация без каких-либо ограничений (для выбора ориентации каждого спина подбрасывается правильная монета). В результате первого шага порождаются спиновые конфигурации с большим числом нарушений правил льда. На втором шаге проводится отжиг полученной случайной конфигурации до образования конфигурации основного состояния (т.е. состояния без нарушений правил льда) с использованием стандартного алгоритма Метрополиса при случайном выборе спина [14]. Данный алгоритм оказывается довольно быстрым, позволяет рассматривать большие кластеры и тривиальным образом допускает модификацию для использования на многопроцессорных установках.

Используя этот алгоритм, мы порождали спиновые конфигурации, полностью удовлетворяющие правилу льда, для конечных кластеров с числом спинов N' . Для каждого кластера порождалось L конфигураций. Для каждой конфигурации с индексом l полная намагниченность подсчитывалась по следующей формуле:

$$\mathbf{M}(l) = \sum_{k=1}^N \sigma_k(l) \mathbf{e}_k. \quad (1)$$

Здесь $\sigma_k(l) = \pm 1$ – изинговские спины в конфигурации с индексом l , k – номер спина в кластере. Суммирование проводилось только по внутренней области кластера, не включающей по два слоя вершин со стороны каждой границы. По этой причине число N спинов во внутренней части кластера было меньше общего числа спинов N' . Суммирование только по внутренней области кластера проводилось с целью избежать влияния границы кластера. Единичные векторы \mathbf{e}_k равны $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y$ для горизонтальных и вертикальных связей соответственно. Число спинов во внутренней части кластера N менялось в преде-

лах от 40 до 77224. Число порождаемых конфигураций всегда было равным $L = 10^5$. В отдельных случаях для уточнения и проверок использовались значения $N = 1986024$ и $L = 10^6$.

Полученные значения намагниченности использовались для вычисления первых выборочных моментов по формулам

$$E(M_{x,y}^m) = L^{-1} \sum_{l=1}^L M_{x,y}^m(l), \quad (2)$$

$$E(M_{x,y}^m M_{x,y}^n) = L^{-1} \sum_{l=1}^L M_{x,y}^m(l) M_{x,y}^n(l), \quad (3)$$

где степени $m, n = 1-4$. Также рассчитывались одномерная и двумерная гистограммы $g(M_x)$ и $G(M_x, M_y)$, которые использовались для оценки гипотезы о функции распределения намагниченности. Все величины вычислялись как функции числа спинов N во внутренней области кластера. Для контроля проводились аналогичные вычисления для системы спинов без правил льда, т.е. без взаимодействия, результаты для которой хорошо известны. Перейдем к описанию полученных результатов.

Прежде всего, при практической реализации алгоритма были обнаружены значительные артефакты и корреляции, вносимые простыми генераторами псевдослучайных чисел. С целью их исключения мы проводили начальные расчеты с использованием файлов действительно случайных (а не псевдослучайных) чисел [20]. К сожалению, размер этих файлов не позволяет проводить достаточно длинные расчеты, которые необходимы для больших кластеров. Поэтому файлы действительно случайных чисел были использованы только для тестирования различных генераторов псевдослучайных чисел. Таким способом было установлено, что генератор псевдослучайных чисел “петля Мерсенна” дает удовлетворительные результаты. К тому же он обладает гигантским периодом, что позволяет проводить самые длительные расчеты [21].

Результаты проведенных расчетов приведены на рис. 2–4. На рис. 2 изображена двумерная гистограмма, или плотность конфигураций как функция намагниченности, $G(M_x, M_y)$. Расчеты моментов нечетных порядков $E(M_{x,y}^{1,3})$ показали, что они равны нулю. Моменты четных порядков изотропны, $E(M_x^{2,4}) = E(M_y^{2,4})$, что соответствует изотропии на рис. 2. Также равен нулю и смешанный момент $E(M_x M_y)$. Точность этих утверждений растет с ростом числа порождаемых конфигураций L (проверено до значений $L = 10^6$). На рис. 3 приведена зависимость дисперсии намагниченности от числа спинов

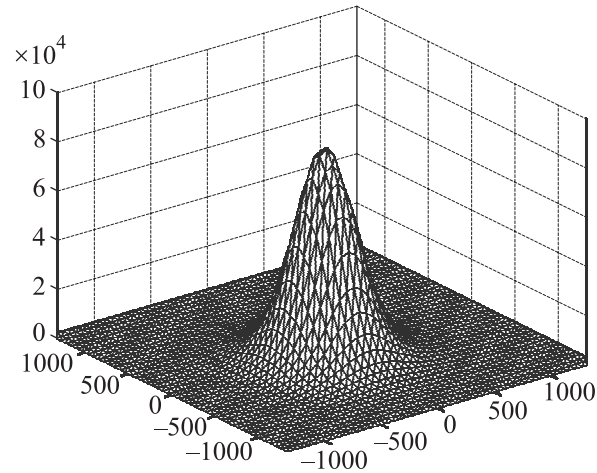


Рис. 2. Двумерная гистограмма (число конфигураций основного состояния в зависимости от намагниченности $G(\mathbf{M})$). Полное число порожденных конфигураций $L = 8 \cdot 10^6$

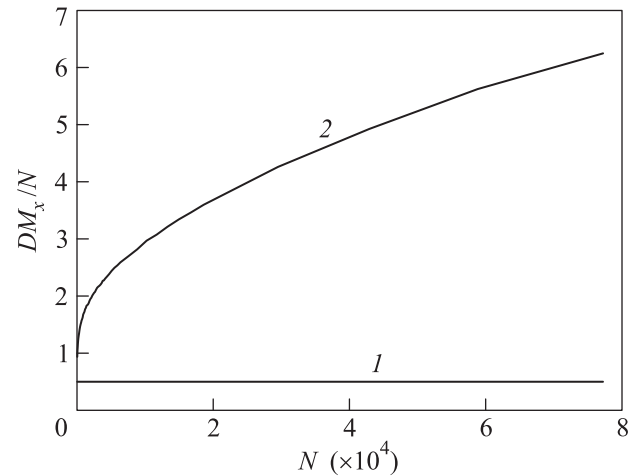


Рис. 3. Зависимость отношения дисперсии намагниченности вдоль оси x к числу N спинов в кластере (DM_x/N) для системы спинов без взаимодействия (кривая 1) и для спинового льда (кривая 2)

во внутренней части кластера. По вертикальной оси здесь отложена величина DM_x/N . Результаты приведены как для модели спинового льда (сильное короткодействующее взаимодействие), так и для системы без взаимодействия. На рис. 4 показаны зависимости $\partial \ln[G(M)/G(0)]/\partial M^2$ при $M \rightarrow 0$ от значения N для спинового льда и для системы спинов без взаимодействия.

Из рис. 2 видно, что плотность имеет максимум при нулевой намагниченности и изотропна. Эти результаты ожидалось из общих соображений. Они могут рассматриваться как доказательство отсутствия грубых ошибок в численных расчетах. Дело в том,

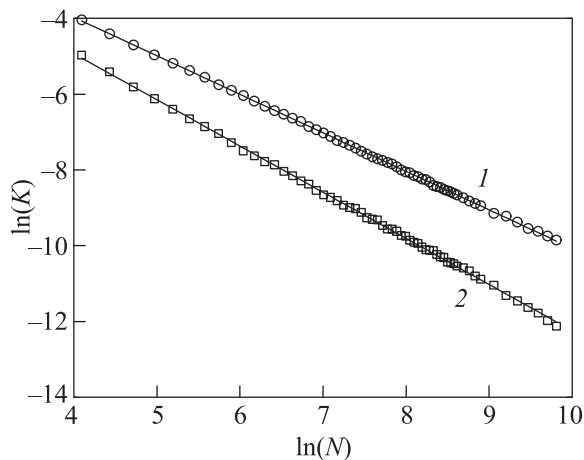


Рис. 4. Зависимость $K = \partial \ln G(M) / \partial M^2$ при $M \rightarrow 0$ от числа N спинов в системе для системы спинов без взаимодействия (кривая 1) и для спинового льда (кривая 2)

что этот график очень чувствителен к любой попытке ускорить алгоритм порождения конфигураций вставкой каких-либо более быстрых, но детерминированных элементов. Вставка на первый взгляд совершенно изотропных детерминированных элементов в процесс порождения конфигураций приводит к сильному искажению графика. Так, замена случайного выбора спина для возможного переворота на последовательный перебор всех спинов вызывает смещение максимума из нуля.

Из рис. 3 видно, что для системы без взаимодействия $DM_x/N = \text{const}$. Это и следовало ожидать для невзаимодействующих и, следовательно, некоррелированных величин. Данный результат также согласуется с применимостью центральной предельной теоремы для системы независимых спинов. Соответственно дисперсия намагниченности здесь пропорциональна числу спинов. Для системы с короткодействующим взаимодействием, задаваемым правилом льда, величина $DM_x/N \neq \text{const}$. Анализ показывает, что в этом случае возможна аппроксимация зависимости DM_x/N от числа спинов N степенной функцией вида

$$DM_x/N = a + bN^\alpha, \quad (4)$$

где параметр $\alpha = 0.37$. Этот важный результат означает нарушение условия применимости центральной предельной теоремы, а именно условия независимости случайных величин (для независимых спинов дисперсия намагниченности растет линейно с ростом числа спинов). Поэтому естественно предположить, что распределение намагниченности может отличаться от гауссовского.

Далее это предположение будет детально проверено и подтверждено. Однако сначала имеет смысл рассмотреть соотношение результата (4) с важным теоретическим утверждением о дипольном характере корреляционных функций в основном состоянии [4–6]. Строго говоря, последнее было сделано для трехмерной модели спинового льда. Вместе с тем оно прямо и часто распространяется и на два измерения. В этом случае указанное утверждение может быть записано в следующем виде:

$$S_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) = \langle M_\alpha(\mathbf{r})M_\beta(0) \rangle \propto \frac{\delta_{\alpha\beta} - 2n_\alpha n_\beta}{r^2}, \quad (5)$$

где $n_\alpha = r_\alpha/r$. Покажем, что результат, выражаемый формулой (4), не согласуется с дипольным характером спин-спиновых корреляционных функций (5). Для этого проведем оценку дисперсии (суммирование осуществляется только по горизонтальным связям):

$$DM_x = E \left[\left(\sum_{i=1}^{N/2} \sigma_i \right) \left(\sum_{k=1}^{N/2} \sigma_k \right) \right] = \quad (6)$$

$$= E \sum_{i=1}^{N/2} \sigma_i^2 + E \sum_{i \neq k}^{N/2} \sigma_i \sigma_k \leq \frac{N}{2} \left[1 + \sum_i^{N/2} E(\sigma_i \sigma_0) \right]. \quad (7)$$

Выражение $E(\sigma_i \sigma_0)$ есть корреляционная функция спинов $S_{xx}(r_i, 0)$. Используя (5), можно получить оценку

$$DM_x \leq \frac{N}{2} \left(1 + a_1 \int_{b_1}^{\sqrt{N}} \frac{dr}{r} \right) \Rightarrow \frac{DM_x}{N} \leq a_2 + b_2 \ln N, \quad (8)$$

где $a_{1,2}$, $b_{1,2}$ – положительные константы. Правая часть последнего неравенства растет медленнее, чем степенная функция (4). Для воспроизведения зависимости (4) следует предположить, что на больших расстояниях корреляционная функция ведет себя как $S(r) \sim r^{-2+\beta}$ с параметром $\beta = 0.74$, т.е. корреляции убывают значительно медленнее, чем дипольным образом: $S(r) \sim r^{-1.26}$. Таким образом, выражение (4) противоречит утверждению о дипольном характере корреляционной функции для двумерного спинового льда.

Полученное расхождение следует обсудить подробнее. Результат (5) основан на теоретических исследованиях двух типов. Во-первых, часто утверждается, что такое поведение соответствует точному решению [11]. Это является не более чем чрезмерным расширением применимости результатов работы [11]. В [11] подобное поведение корреляционных функций было получено для 6-вершинной модели с параметром $\Delta = 0$, тогда как для модели двумерного

льда $\Delta = 1/2$. Известно, что для моделей, допускающих точное решение, такое отличие может оказаться существенным и способно качественно изменить результат. Во-вторых, ссылаются на работы [4–6], которые используют “очевидное” представление функции распределения намагниченности в виде

$$P\{\mathbf{M}\} \propto \exp[s(\mathbf{M})], \quad s(\mathbf{M}) = s(0) - \frac{K}{2}\mathbf{M}^2, \quad (9)$$

где $s(\mathbf{M})$ – энтропия системы при фиксированной намагниченности. Однако применение (9) фактически означает изначальное использование гауссовского распределения намагниченности. Как было отмечено выше, результат (3) заставляет усомниться в справедливости этого предположения (по крайней мере для двумерного случая). На формальном языке негауссовость распределения означает, что функция $s(\mathbf{M})$ имеет более сложный вид, чем в формуле (9). Она может содержать следующие члены разложения по намагниченности [22], или даже совсем не иметь разложения.

Неприменимость формул (9) в двумерном случае подтверждается следующим результатом. Если зависимость плотности конфигураций от модуля намагниченности обработать согласно формулам (9), то величина $\partial \ln G(M)/\partial(M^2)$ при $M \rightarrow 0$ будет играть роль экспериментального значения коэффициента K в (9). Зависимость этой величины от числа спинов в кластере изображена на рис. 4. При этом для невзаимодействующих спинов имеем $K \sim N^{-1}$ (прямая 1). А так как полная намагниченность \mathbf{M} сама пропорциональна N , энтропия $s(\mathbf{M})$ оказывается пропорциональной N , т.е. экстенсивной величиной. В противоположность этому для системы с правилами льда $K \sim N^{-1.23}$ (прямая 2), а условная энтропия $s(\mathbf{M}) \sim N^{0.77}$, т.е. неэкстенсивна. Происхождение указанной неэкстенсивности, так же как и результат (3), объясняется дальнедействующим характером корреляций в спиновом льде. Подчеркнем, что неэкстенсивность связана не с дальнедействующим характером взаимодействия (оно предельно короткодействующее), а именно с дальнедействующими корреляциями между спинами. На формальном языке этот результат означает, что формула (9) с постоянной константой K численным экспериментом не подтверждается.

Результаты расчетов также показывают, что правила льда приводят к уширению плотности распределения намагниченности по сравнению с гауссовой кривой для системы невзаимодействующих спинов. Проверка гипотезы о гауссовой плотности распределения методом Пирсона дает для параметра Пирсо-

на значение $\chi^2 = 3 \cdot 10^3$. Оно больше квантили $\chi_{\gamma,97}^2$ при любых доверительных вероятностях γ . (Было использовано 100 интервалов; число степеней свободы $k = 100 - 2 - 1 = 97$.) Это означает, что гипотеза о гауссовом характере экспериментальной плотности не может быть принята при любой доверительной вероятности. Экспериментальная функция распределения для спинового льда наиболее близка к авторемодельному распределению $f(x, t) = t^{-H}p(xt^{-H})$ со значением параметра $H \approx 0.68$. Роль дискретного времени при этом играет число спинов в системе, $t \sim N$. Такого типа функции распределения встречаются в теории аномальной диффузии (нормальная диффузия соответствует значению $H \approx 0.5$).

В заключение еще раз перечислим основные результаты работы. Поведение дисперсии свидетельствует о корреляциях, убывающих медленнее, чем дипольные корреляции (см. рис. 3 и оценки). Условная энтропия является неэкстенсивной величиной (см. рис. 4). Для намагниченности двумерного спинового льда не выполняется центрально-предельная теорема, т.е. плотность распределения намагниченности является негауссовой (см. рис. 4 и результаты проверки гипотезы о функции распределения). Эти результаты являются следствием дальнедействующих корреляций между спинами.

Автор выражает благодарность С.Н. Молоткову и И.А. Рыжкину за постановку задачи, поддержку в работе и за обсуждение результатов.

1. M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow et al., Phys. Rev. Lett. **79**, 2554 (1997).
2. L. Balents, Nature **464**, 199 (2010).
3. A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava et al., Nature **399**, 333 (1999).
4. D. A. Huse, W. Krauth, R. Moessner et al., Phys. Rev. Lett. **91**, 167004 (2003).
5. S. V. Isakov, K. Gregor, R. Moessner et al., Phys. Rev. Lett. **93**, 167204 (2004).
6. C. L. Henley, Phys. Rev. B **71**, 014424 (2005).
7. I. A. Ryzhkin, JETP **101**, 481 (2005).
8. C. Castelnovo, R. Moessner, and S. L. Sondhi, Nature **451**, 42 (2008).
9. R. F. Wang, C. Nisoli, R. S. Freitas et al., Nature **439**, 303 (2006).
10. E. H. Lieb, Phys. Rev. Lett. **18**, 692 (1967).
11. B. Sutherland, Phys. Lett. A **26**, 532 (1968).
12. E. H. Lieb and F. Y. Wu, in *Phase Transition and Critical Phenomena* (ed. by C. Domb and M. S. Green), Academic, London, 1972.
13. R. J. Baxter, *Exactly Solved Models in Statistical Mechanics*, Academic Press, London, 1982.

14. K. Binder and D. W. Heermann, *Monte Carlo Simulation in Statistical Physics*, 5th ed., Springer, Heidelberg, 2010.
15. A. Rahman and F. H. Stillinger, *J. Chem. Phys.* **57**, 4009 (1972).
16. A. Yanagawa and J. F. Nagle, *J. Chem. Phys.* **43**, 329 (1979).
17. D. J. Adams, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **17**, 4063 (1984).
18. G. T. Barkema and M. E. J. Newman, *Phys. Rev. E* **57**, 1155 (1998).
19. L. D. C. Jaubert, M. J. Harris, T. Fennell et al., *Phys. Rev. X* **3**, 011014 (2013).
20. G. Marsaglia, <http://www.stat.fsu.edu/pub/diehard>.
21. M. Matsumoto, <http://www.math.sci.hiroshima-u.ac.jp/m-mat/MT/emt.html>.
22. I. A. Ryzhkin and R. W. Whitworth, *J. Phys.: Cond. Matter* **9**, 395 (1997).