

сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
Дубна

С326

К-89

14/2-79

P17 - 12169

1791/2-79

А.Л.Куземский

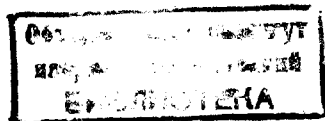
СПЕКТР МАГНИТНЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ
ФЕРРОМАГНИТНЫХ ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ
И РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ

1979

P17 - 12169

А.Л.Куземский

СПЕКТР МАГНИТНЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ
ФЕРРОМАГНИТНЫХ ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ
И РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ



Куземский А.Л.

P17 - 12169

Спектр магнитных возбуждений ферромагнитных переходных металлов и рассеяние нейтронов

Дан обзор квантово-статистических моделей ферромагнитных переходных металлов и методов их решения. Обсуждается соответствие результатов решения этих моделей и данных по рассеянию тепловых нейтронов в ферромагнетиках.

Работа выполнена в Лаборатории теоретической физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1979

Kuzemsky A.L.

P17 - 12169

Spectrum of Ferromagnetic Transition Metal Magnetic Excitations and Neutron Scattering

Quantum statistical models of ferromagnetic transition metals as well as methods of their solutions are reviewed. The correspondence of results on solving these models and the data on scattering thermal neutrons in ferromagnetics is discussed.

The investigation has been performed at the Department of Theoretical Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1979

P17 - 12169

А.Л.Куземский

СПЕКТР МАГНИТНЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ
ФЕРРОМАГНИТНЫХ ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ
И РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ

Куземский А.Л.

P17 - 12169

Спектр магнитных возбуждений ферромагнитных переходных металлов и рассеяние нейтронов

Дан обзор квантово-статистических моделей ферромагнитных переходных металлов и методов их решения. Обсуждается соответствие результатов решения этих моделей и данных по рассеянию тепловых нейтронов в ферромагнетиках.

Работа выполнена в Лаборатории теоретической физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований, Дубна 1979

Kuzemsky A.L.

P17 - 12169

Spectrum of Ferromagnetic Transition Metal Magnetic Excitations and Neutron Scattering

Quantum statistical models of ferromagnetic transition metals as well as methods of their solutions are reviewed. The correspondence of results on solving these models and the data on scattering thermal neutrons in ferromagnetics is discussed.

The investigation has been performed at the Department of Theoretical Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1979

§1. ВВЕДЕНИЕ

В значительной мере прогресс в изучении структурных и динамических свойств магнитных веществ обязан достижениям магнитной нейтронографии^{/1-3/}. Уникальные возможности метода рассеяния тепловых нейтронов позволяют получать информацию о магнитной и кристаллической структуре, распределении магнитных моментов, о спектре магнитных возбуждений, критических флуктуациях и т.п. Для интерпретации полученных данных необходимо учитывать электрон-электронные и электрон-ядерные взаимодействия в системе и принцип Паули^{/1/}. Таким образом, магнетизм можно последовательно описать только в рамках квантовой статистической теории конденсированного состояния.

Благодаря наличию внутренней недостроенной nd - или nf -оболочки все свободные атомы переходных элементов сильно магнитны согласно правилу Хунда. При образовании кристалла электромагнитные оболочки атомов перестраиваются, и для ясного понимания свойств кристалла необходимо знать волновые функции и энергии валентных электронов. Расчет энергетических уровней электронов в кристалле весьма сложен^{/4/}; с качественной точки зрения, речь идет о том, насколько изменяются при образовании кристалла атомные волновые функции валентных электронов, насколько они делокализуются.

Три основные модели, которые в настоящее время используются в квантовой теории магнетизма /модель локализованных спинов Гейзенберга^{/1/}, модель ферми-жидкости^{/1/}; модель Хаббарда^{/5/} /, по-разному отвечают на этот вопрос. Несмотря на достигнутые успехи в понимании физики магнитных явлений, из-за трудностей точного расчета электронной зонной структу-

ры, мы все еще, за исключением, может быть, случая редких земель, не можем с полной определенностью утверждать, какая из указанных микроскопических моделей /или их комбинаций/ наиболее адекватно отражает реальную ситуацию в том или ином веществе. Вот почему определение истинного механизма магнитоупорядоченного состояния считается в настоящее время проблемой номер один в теории магнетизма.

Модель Гейзенберга^{/1-3/} основана на предположении о том, что волновые функции магнитоактивных электронов в кристалле мало отличаются от атомных орбиталей. Считается, что эта модель в основном применима к веществам, у которых энергия основного состояния отделена щелью конечной ширины от энергий возбужденных токовых состояний, т.е. к полупроводникам и изоляторам. Эта модель также хорошо применима к ряду редкоземельных магнетиков, поскольку недостроенные f-слои имеют малые эффективные радиусы /для редкоземельных f-металлов важную роль в установлении магнитного порядка играет косвенный обмен через электроны проводимости/.

Модель коллективизированных электронов^{/1,6/}, или модель ферми-жидкости, применяется к металлам, в которых система бывших валентных электронов образует по всему объему кристалла подвижную ферми-жидкость. /Иногда, в случае d-металлов, у которых недостроенные d-слои имеют не столь малые эффективные радиусы, как f-слои, и потому имеется заметное перекрытие между ближайшими соседями, говорят о смеси двух ферми-жидкостей из s- и d-электронов/.

Модель узких зон, или модель Хаббарда^{/3,5/} в определенном смысле является промежуточной моделью и первоначально была предложена для описания 3d-металлов. В настоящее время модель Хаббарда и ее обобщения применяются для описания магнитных свойств чистых 3d-металлов и их сплавов, халькогенидов переходных и редкоземельных металлов, актинидов и др. В настоящей работе мы попытаемся показать, что спектр возбуждений модели Хаббарда и некоторых ее простых модификаций представляет значительный интерес с точки зрения применения метода рассеяния нейтронов.

2. МОДЕЛЬ ХАББАРДА

В настоящей работе мы будем говорить только о чистых 3d-металлах, а более конкретно - о никеле и железе. Считается, что исходный энергетический спектр системы представляет собой широкую sp-зону, в которую "погружена" система пяти узких пересекающихся d-зон /рис. 1/. В модели Хаббарда сде-

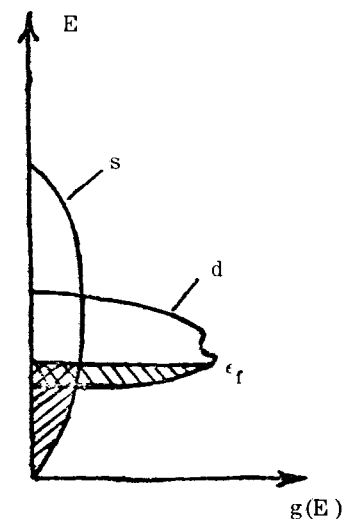


Рис. 1. Схематический вид зонной структуры ферромагнитного переходного металла.

лана попытка учесть весь комплекс необычных свойств 3d-металлов. В частности, из эксперимента известно, что спин-волновое рассеяние медленных нейтронов^{/1-3/} в этих веществах можно описывать на основе модели Гейзенберга. Найдено также, что распределения зарядовой плотности в ферромагнитных металлах близки к атомным распределениям^{/1/}. С другой стороны, средние атомные магнитные моменты заметно отличаются от атомных и являются дробными^{/1-3/}. О значительном вкладе d-электронов в низкотемпературную теплоемкость $c_{эл.} = \frac{\pi^3}{3} \cdot g(\epsilon_f) T = \gamma T$ говорит то, что коэффициент γ у переходных металлов больше, чем у нормальных металлов. О сильной

коллективизации d-электронов говорят также оценки энергии связи и исследование фермиовских поверхностей.

В модели Хаббарда^{/3,5/} эти аспекты поведения системы удается описать, предполагая, что d-электроны образуют зону, но испытывают сильное кулоновское отталкивание на одном узле решетки.

Рассмотрим систему d-электронов, гамильтониан которой имеет обычный вид^{/3/}:

$$H = \sum_i \left[\frac{1}{2m} \vec{p}_i^2 + V(\vec{r}_i) \right] + 1/2 \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} = h + v. \quad /1/$$

Собственные функции невозмущенного гамильтониана $\psi_{\vec{k}}(\vec{r})$ можно разложить в ряд Фурье следующим образом:

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = N^{-1/2} \sum_i \phi_n(\vec{r} - \vec{R}_i) e^{i\vec{k}\vec{R}_i}. \quad /2/$$

Функции $\phi_n(\vec{r} - \vec{R}_i)$, известные как функции Ванье, локализованы в пространстве и ведут себя подобно атомным волновым функциям. Каждая функция Ванье характеризует какую-то данную зону, отмечаемую индексом n. Функции $\phi_n(\vec{r} - \vec{R}_i)$ образуют полную ортонормированную систему функций, полученную из $\psi_{\vec{k}}(\vec{r})$ с помощью унитарного преобразования; коэффициенты этого преобразования равны $\exp(i\vec{k}\vec{R}_i)$. Запишем теперь гамильтониан /1/ в представлении вторичного квантования в представлении Ванье /для простоты мы рассматриваем случай одной зоны/:

$$H = \sum_{ij\sigma} t_{ij} a_{i\sigma}^+ a_{j\sigma} + 1/2 \sum_{ijkl} \sum_{\sigma\sigma'} \langle ij | \frac{1}{r} | kl \rangle a_{i\sigma}^+ a_{j\sigma}^+ a_{l\sigma'} a_{k\sigma'} \quad /3/$$

$$t_{ij} = \int \phi^*(\vec{r} - \vec{R}_i) h(\vec{r}) \phi(\vec{r} - \vec{R}_j) d\vec{r}, \quad /4/$$

$$\langle ij | \frac{1}{r} | kl \rangle = e^2 \int \frac{\phi^*(\vec{r} - \vec{R}_i) \phi^*(\vec{r}' - \vec{R}_j) \phi(\vec{r} - \vec{R}_k) \phi(\vec{r}' - \vec{R}_l)}{|\vec{r}' - \vec{r}|} d\vec{r} d\vec{r}'. \quad /5/$$

Матричный элемент t_{ij} описывает перескоки электрона с атома на атом; чем больше частота перехода, тем сильнее коллективизация электронов, т.е. ширина полос тем меньше, чем прочнее связаны электроны. Перепишем /3/ в следующем виде:

$$H = \sum_{ij\sigma} t_{ij} a_{i\sigma}^+ a_{j\sigma} + U/2 \sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i-\sigma} + 1/2 \sum_{ij} \sum_{\sigma\sigma'} \langle ij | \frac{1}{r} | ij \rangle n_{i\sigma} n_{j\sigma'} - 1/2 \sum_{ij} \sum_{\sigma\sigma'} J_{ij} a_{i\sigma}^+ a_{i\sigma} a_{j\sigma'}^+ a_{j\sigma'} + \sum_{ij} \sum_{\sigma\sigma'} \langle ii | \frac{1}{r} | jj \rangle a_{i\sigma}^+ a_{i\sigma} a_{j\sigma'}^+ a_{j\sigma'}. \quad /6/$$

Здесь введены обозначения

$$U = e^2 \int |\phi(\vec{r} - \vec{R}_i)|^2 |\vec{r} - \vec{r}'|^{-1} |\phi(\vec{r}' - \vec{R}_i)|^2 d\vec{r} d\vec{r}',$$

$$J_{ij} = e^2 \int \phi^*(\vec{r} - \vec{R}_i) \phi(\vec{r} - \vec{R}_j) \phi^*(\vec{r}' - \vec{R}_j) \phi(\vec{r}' - \vec{R}_i) |\vec{r} - \vec{r}'|^{-1} d\vec{r} d\vec{r}'.$$

Величина J_{ij} представляет собой интеграл прямого обмена. U - интеграл внутриатомной кулоновской корреляции электронов с противоположными спинами. Третий член в /6/ с точки зрения магнетизма не интересен, т.к. он пропорционален $A_{ij} n_i n_j$. Последний член в /6/ описывает переходы антипараллельных спиновых пар; эти эффекты мы не будем рассматривать. Оценки показывают, что для переходных металлов наибольшим интегралом является U^{/3/}. Исходя из этого, Хаббард предложил следующую модель^{/5/}.

$$H = \sum_{ij\sigma} t_{ij} a_{i\sigma}^+ a_{j\sigma} + U/2 \sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i-\sigma} \quad /7/$$

Отталкивание электронов на одном центре U не убывает при разведении атомов. Таким образом, в модели Хаббарда заключена возможность перехода от простой зонной схемы к описанию типа Гайтлера-Лондона. Поэтому можно ожидать, что наиболее интересные эффекты: переход от обычного металла при $|t_{ij}| \gg U$, описываемого зонной схемой, к диэлектрику с сильной корреляцией гайтлер-лондоновского типа при $|t_{ij}| \ll U$, а также различные магнитные свойства - должны содержаться уже в гамильтониане /7/. В случае одного электрона на атом (n=1) при сильном взаимодействии ($U \gg |t_{ij}|$) в рамках теории возмущения второго порядка можно показать, что эффективный гамильтониан $H_{\text{эфф}} = H(U) (E_0 - H(t_{ij}))^{-1} H(U)$ сводится к антиферромагнитному гамильтониану Гейзенберга^{/7/}:

$$H_{\text{эфф}} = 1/2 \sum_{ij} |t_{ij}|^2 U \{ \vec{\sigma}_i \cdot \vec{\sigma}_j - 1 \}.$$

Таким образом, основное состояние системы в случае очень сильной корреляции скорее всего является антиферромагнитным. Простейшее приближение Хартри-Фока в /7/ $n_{i\sigma} n_{i-\sigma} \rightarrow \langle n_{i\sigma} \rangle \langle n_{i-\sigma} \rangle$ дает известный критерий возникновения магнетизма Стонера $Ug(\epsilon_f) > 1$. Порог возникновения магнетизма зависит от плотности состояний электронов $g(\epsilon_f)$ на границе Ферми ϵ_f .

Гамильтониан Хаббарда обладает свойством ротационной инвариантности, т.е. при действии оператора вращения $R = \exp\{-\frac{1}{2}i\phi \sum_j \hat{K}_j\}$, где $\sigma_{ix} = (a_i^+ a_{i+1} + a_i^+ a_{i-1})$, $\sigma_{iy} = \frac{1}{i}(a_i^+ a_{i+1} - a_i^+ a_{i-1})$ и $\sigma_{iz} = (n_i - n_{i+1})$, справедливо равенство $H' = RHR^{-1}$.

Можно также убедиться в том, что $[\sum \sigma_{iz}, H]_- = 0$, т.е. полный спин является интегралом движения. Таким образом, операторы $S^\pm = S^x \pm iS^y$ изменяют общую z-компоненту на ± 1 . Как показал Эдвардс /8/, из свойства ротационной инвариантности следует наличие спин-волнового полюса у обобщенной спиновой восприимчивости

$$\chi^{+-}(\vec{q}, \omega) = (g\mu_B)^2 \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt e^{i\omega t} \langle [S^+(\vec{q}, t), S^-(\vec{q})]_- \rangle \quad /8/$$

для модели Хаббарда /7/ следующего вида:

$$\hbar\Omega_q = Dq^2 + O(q^4),$$

$$Dq^2 = \frac{1}{2\langle S^z \rangle} \{ \hbar q \langle [S_{\vec{q}}^-, S_{-\vec{q}}^+]_- \rangle - \hbar^2 q^2 \lim_{\omega \rightarrow 0} \lim_{q \rightarrow 0} \chi_{ij}^q \}. \quad /9/$$

Обозначения приведены в работе /8/. Выражение /9/ является точной формулой, справедливой для любого металлического или неметаллического ферромагнетика или неферромагнетика в статическом магнитном поле. В общем случае D определяется зонной структурой кристалла. Для простой кристаллической решетки приближение хаотических фаз дает для D следующий результат /8/:

$$D = \frac{U}{6\Delta} \sum_k \{ \nabla_k^2 \epsilon_k \} (n_{k\uparrow} + n_{k\downarrow}) + \frac{U}{3\Delta^2} N^{-1} \sum_k \{ \nabla_k \epsilon_k \}^2 (n_{k\uparrow} - n_{k\downarrow}). \quad /10/$$

Здесь $\epsilon_k = \sum_{ij} t_{ij} \exp\{-ik(\vec{R}_i - \vec{R}_j)\}$ - зонная энергия, $\Delta = U/N \sum_p (n_{p\downarrow} - n_{p\uparrow})$ - зонное расщепление.

На основании ранних аргументов Херринга и Киттеля /9/ считается, что в простых приближениях спиновые волны равно хорошо можно описать как в рамках модели локализованных спинов, так и в рамках модели коллективизированных электронов /10/. Поэтому изучение, например, температурной зависимости среднего момента в Ni и Fe в рамках низкотемпературной спин-волновой теории не дает указаний в пользу той или иной модели. Предлагались разные способы для проверки зонной теории магнетизма /см., напр., /11/. Интересный результат получен в работе Фонера и др. /10/ с помощью эффекта Мессбауэра. Основываясь на предсказании Вольфарта /12/ они исследовали поведение Fe и Ni в очень сильных магнитных полях /выше технического насыщения/ при $T = 4,2$ К. В этой области вклад спиновых волн практически полностью подавлен. Они нашли, что восприимчивость $\chi_{HF} = \partial M / \partial H > 0$, в то время как для модели локализованных спинов при тех же условиях должно быть $\chi_{HF} = 0$. Это важный аргумент в пользу зонной модели магнетизма. Однако для интерпретации эксперимента в работе /10/ используется, по-существу, простейшая модель Стонера, и поэтому выводы носят лишь качественный характер.

С нашей точки зрения, наиболее отчетливо различие между моделями проявляется в спектре возбуждений в системе /13/. Коллективизированная модель имеет более сложный спектр, чем модель локализованных спинов. Этот спектр представляет также наибольший интерес с точки зрения применения метода рассеяния медленных нейтронов, который является уникальным способом непосредственного изучения магнитной динамики магнитоупорядоченных веществ.

3. ТЕОРИЯ РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ В ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛАХ

Как хорошо известно /2,3/, сечение неупругого рассеяния нейтронов выражается через мнимую часть обобщенной спиновой восприимчивости $\chi^{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega)$. Поперечная спиновая восприимчивость определяется следующим образом:

$$\chi^{+-}(\vec{q}, \omega) = (g\mu_B)^2 \int_{-\infty}^{\infty} \langle \langle S^+(\vec{q}, t), S^-(\vec{q}) \rangle \rangle e^{i\omega t} dt \quad /11/$$

где $\langle\langle A(t), B \rangle\rangle = -\frac{i}{\hbar} \theta(t) \langle [A(t), B] \rangle$ - двухвременная запаздывающая температурная функция Грина. Спиповые операторы в /11/ выражаются через операторы вторичного квантования в \vec{q} -представлении /3/:

$$S^+(\vec{q}) = F(\vec{q}) \sum_k S_k^+(\vec{q}) = F(\vec{q}) \sum_k a_{k+q}^+ a_{k\downarrow},$$

$$S^-(\vec{q}) = F(\vec{q}) \sum_k S_k^-(\vec{q}) = F(\vec{q}) \sum_k a_{k\downarrow}^+ a_{k+q},$$

$$F(\vec{q}) = \int d^3r e^{i\vec{q}\vec{r}} |\phi(\vec{r})|^2.$$

Тогда сечение неупругого рассеяния на поперечных спиновых компонентах запишется в виде /3/

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \left(\frac{e^2}{m_e c^2}\right)^2 \frac{k}{k_0} |F(\vec{q})|^2 \frac{1}{4} \{1 + (\vec{q} \cdot \vec{m})^2\} \frac{N}{(g\mu_B)^2 \pi} \frac{1}{1 - \exp(-\hbar\beta\omega)} \times$$

$$\times \{ \text{Im} \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) - \text{Im} \chi_0^{+-}(-\vec{q}, -\omega) \}. \quad /12/$$

Поскольку структура обобщенной спиновой восприимчивости и вид ее полюсов определяется выбором модельного гамильтониана системы и характером сделанных при ее вычислении приближений, то по результатам нейтронных экспериментов можно судить об адекватности микроскопических моделей. Однако для надежного суждения о применимости той или иной модели необходимо измерение восприимчивости во всех точках фурье-пространства и для всех температур, что не всегда позволяет имеющаяся экспериментальная техника. Для расчета спиновой восприимчивости $\chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega)$, как правило, используется приближение хаотических фаз /2,3/, которое приводит к следующему результату:

$$\chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) = \frac{\chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega)}{1 - U/(g\mu_B)^2 \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega)}, \quad /13/$$

где

$$\chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) = (g\mu_B)^2 N^{-1} \sum_k \frac{n_{k\downarrow} - n_{k+q}}{E(\vec{k} + \vec{q}) - E(\vec{k}) + \hbar\omega} \quad /14/$$

- восприимчивость системы в приближении Хартри-Фока,

$$n_{k\sigma} = \langle n_{k\sigma} \rangle = \{ \exp \beta (E(\vec{k}\sigma) - \epsilon_f) + 1 \}^{-1}; \quad E(\vec{k}\sigma) = \epsilon_{\vec{k}} + U/N \sum_p n_{p\sigma}.$$

Полюса полной восприимчивости /13/ задаются уравнением

$$1 = \frac{U}{N} \text{Re} \sum_k \frac{n_{k\downarrow} - n_{k+q}}{\hbar\omega - \epsilon_{k+q} + \epsilon_k - \Delta}. \quad /15/$$

Из уравнения /15/ при $q, \omega \rightarrow 0$, $q/\omega \rightarrow 0$ следует выражение для спин-волнового полюса $\hbar\omega_q = Dq^2$ вида /10/. Среди полюсов восприимчивости /13/ содержатся полюса хартри-фоковской восприимчивости

$$\text{Im} \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) = \pi (g\mu_B)^2 N^{-1} \sum_k (n_{k+q} - n_k) \delta(\hbar\omega - \epsilon_{k+q} + \epsilon_k - \Delta). \quad /16/$$

Возбуждения, определяемые законом дисперсии

$$\hbar\omega_{\vec{q}} = \epsilon_{k+q} - \epsilon_k + \Delta, \quad /17/$$

принято называть стонеровскими возбуждениями. В отличие от спин-волновых возбуждений переворот спина здесь определяется не коллективным движением системы, а одночастичным /см. рис. 2/. Спектр стонеровских возбуждений имеет щель, равную величине зонного расщепления. Схематически вид спектра возбуждений представлен на рис. 3.

Вдали от точки пересечения стонеровского и спин-волнового спектра можно приближенно разделить вклады в сечение рассеяния от этих двух типов возбуждений. Для этого представим $\text{Im} \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega)$ в виде

$$\text{Im} \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) = \text{Im} \chi_0^{+-} \{ [1 - U/(g\mu_B)^2 \text{Re} \chi_0^{+-}]^2 +$$

$$+ [U/(g\mu_B)^2 \chi_0^{+-}]^2 \}^{-1}. \quad /18/$$

Так как $\text{Im} \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) = 0$, когда (\vec{q}, ω) не принадлежит области, в которой заданы стонеровские возбуждения, то из /18/ следует

$$\text{Im} \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) = \pi \delta \{ 1 - U/(g\mu_B)^2 \text{Re} \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) \}. \quad /19/$$

Поскольку

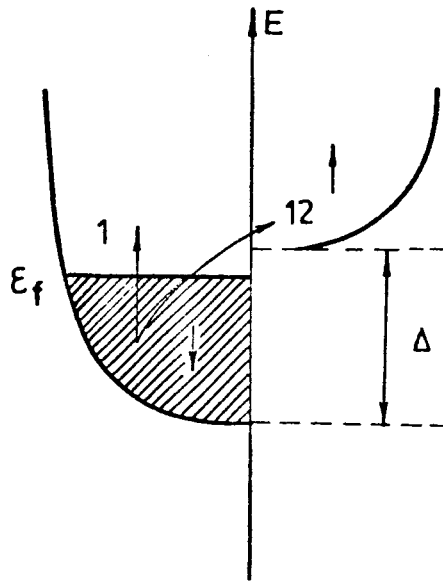


Рис. 2. Возбуждения в коллективизированной модели. Возбуждения типа 1 происходят без переворота спина, а возбуждения типа 2 - с переворотом.

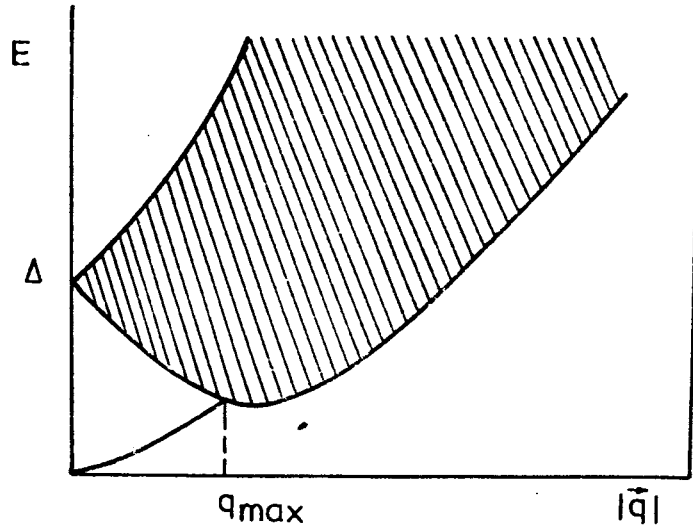


Рис. 3. Спектр спин-волновых и стонеровских возбуждений в однозонной модели.

$$1 - U / (g\mu_B)^2 \operatorname{Re} \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) \approx \frac{\hbar\Omega(\vec{Q}) + \hbar\omega}{\Delta}, \quad /20/$$

то из /19/ получим

$$\operatorname{Im} \chi_0^{+-}(\vec{q}, \omega) = -\pi (g\mu_B)^2 \frac{\Delta}{U} \delta(\hbar\omega + \hbar\Omega(\vec{Q})), \quad /21/$$

где $\pm \vec{Q} = \vec{q} - \vec{\tau}$, $\vec{\tau}$ - волновой вектор обратной решетки. С учетом /18/-/20/ получим из /12/ сечение спин-волнового рассеяния медленных нейтронов

$$\begin{aligned} \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{s.w.} &= \frac{k}{k_0} \frac{(2\pi)^3}{v_0} \left(\frac{\gamma e^2}{m_e c^2} \right)^2 |F(\vec{q})|^2 \frac{1}{4} \{1 + (\vec{q}\vec{w})\} \langle S^z \rangle \times \\ &\times \sum_{\vec{Q}} \sum_{\vec{\tau}} \{ n(\Omega(\vec{Q})) \delta(\hbar\omega + \hbar\Omega(\vec{Q})) \delta(\vec{Q} + \vec{q} - \vec{\tau}) + \\ &+ [n(\Omega(\vec{Q})) + 1] \delta(\hbar\omega - \hbar\Omega(\vec{Q})) \delta(\vec{q} - \vec{Q} - \vec{\tau}) \}, \quad /22/ \end{aligned}$$

где

$$\langle S^z \rangle = \frac{N}{U} \Delta; \quad n(\Omega) = [\exp(\beta\hbar\Omega) - 1]^{-1}.$$

Сечение рассеяния /22/ в точности совпадает с сечением рассеяния для модели Гейзенберга, вычисленным в приближении хаотических фаз /см., напр., /3/ /.

Однако для модели Хаббарда /7/, как это следует из уравнений /12/, /16/, /18/, в области энергий, где электрон в состоянии преодолеть энергетический барьер, связанный с перевертотом спина в эффективном поле /возбуждения типа 2 на рис. 2/, должно наблюдаться рассеяние нейтронов на стонеровских модах /2/

$$\begin{aligned} \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{St.} &= \left(\frac{\gamma e^2}{m_e c^2} \right)^2 \frac{k}{k_0} \frac{1}{4} |F(\vec{q})|^2 \{1 + (\vec{q}\vec{m})^2\} \times \\ &\times \sum_{\sigma \neq \sigma'} \sum_k n_{k\sigma} (1 - n_{k+q\sigma'}) \delta(E(\vec{k} + \vec{q}\sigma') - E(\vec{k}\sigma) - \hbar\omega). \quad /23/ \end{aligned}$$

Таким образом, неупругое рассеяние нейтронов происходит в данном случае вследствие возбуждения переходов $|\vec{k}\sigma\rangle \rightarrow |\vec{k} + \vec{q}\sigma'\rangle$.

Ферромагнитные металлы имеют хорошо выраженные пики неупругого рассеяния на спиновых волнах. Для многих металлов закон дисперсии Dq^2 измерен с большой точностью. На *рис. 4* приведены результаты нейтронных измерений для Ni. По своему характеру сечение рассеяния на стонеровских возбуждениях /23/ сильно отличается от сечения рассеяния на спиновых

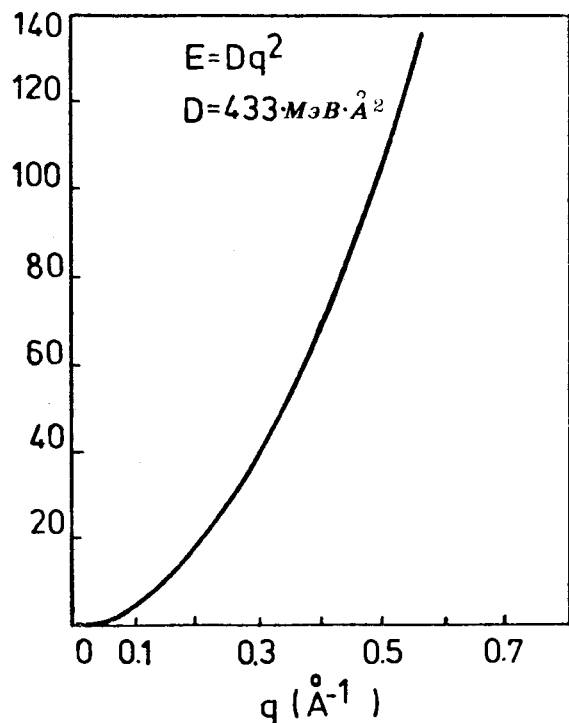


Рис. 4. Закон дисперсии спиновых волн в никеле^{/16/}.

волнах. Стонеровское рассеяние, согласно /23/, должно приводить к сильно размытым диффузным пикам малой интенсивности. Однако поскольку эти возбуждения не возникают в модели Гейзенберга, то их непосредственное обнаружение с помощью неупругого рассеяния нейтронов явилось бы важнейшим аргументом в пользу модели Хаббарда. Это тем более актуально,

что существует большое число косвенных данных об их существовании /см. список литературы в работе^{/13/} /.

Наиболее подробные исследования были проведены с помощью рассеяния тепловых нейтронов^{/14-17/}. Было обнаружено^{/16/}, что в Ni спин-волновая интенсивность рассеяния вдоль направления [110] медленно спадает с увеличением энергии и при значении $E \sim 100$ МэВ резко уменьшается более чем на порядок. Такое внезапное уменьшение было объяснено пересечением спин-волнового спектра и стонеровского континуума. Значение энергии, при котором происходило уменьшение интенсивности, оказалось различным для трех главных симметричных направлений /см. *рис. 5*/. Расчеты обобщенной восприимчивости $\chi^{+-}(\vec{q}, \omega)$ и ее полюсов, проведенные на основе вы-

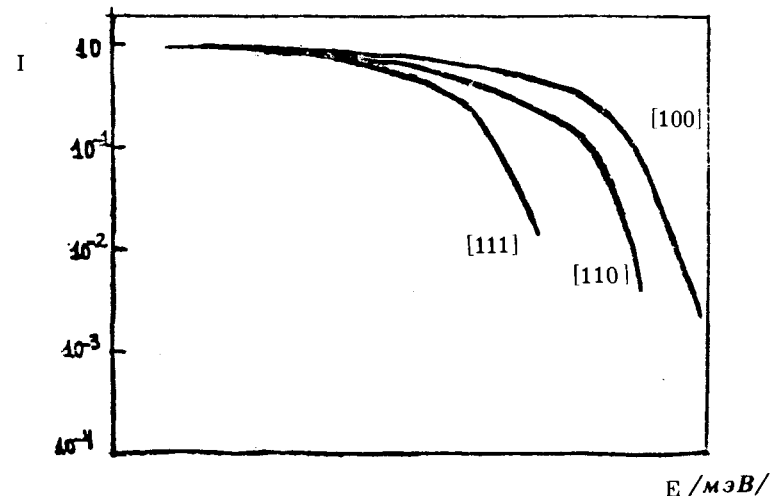


Рис. 5. Измеренная спин-волновая интенсивность в никеле при комнатной температуре вдоль трех направлений симметрии^{/16/}.

числения зонной энергетической структуры никеля^{/18/} с учетом зависимости зонного спинового расщепления от квазинимпульса и многозонных эффектов, показали, что вдоль направления [111] область стонеровских возбуждений находится ниже, чем вдоль двух других направлений /см. *рис. 6*/, что согласуется с экспериментом. Подобное же поведение спин-волновой интен-

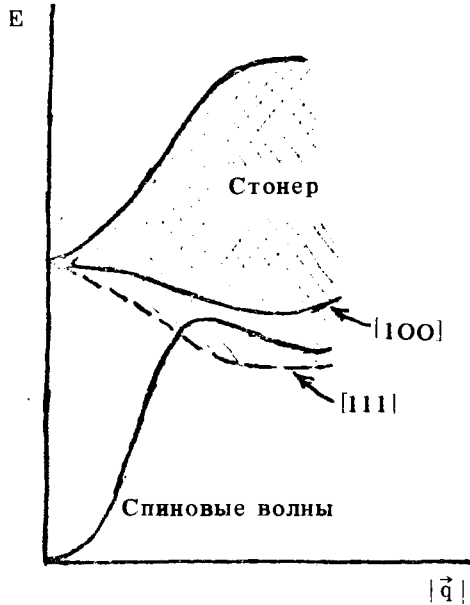


Рис. 6. Результаты теоретического расчета спектра возбуждений для никеля^{18/} в направлении [111].

сивности наблюдается и в железе^{15,17/}. Важнейшим выводом расчетов, проведенных в^{18/}, является утверждение, что в области больших передач импульса $q \sim q_{\max}$ спин-волновое сечение рассеяния всего в два-три раза больше стонеровского сечения рассеяния /см. рис. 7/.

В работе Л.Чера и автора^{13/} была предложена качественная интерпретация этого обстоятельства, основывающаяся на результатах теоретического расчета Томпсона^{19/}. Томпсон рассматривал модель Хаббарда, исходя из правила сумм

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\omega \operatorname{Im} \chi^{+-}(\vec{q}, \omega) = \frac{2\pi}{\hbar} (n_d - n_r)$$

и используя приближение хаотических фаз и приближение эффективной массы. Численным образом он показал, что имеет место равенство /см. рис. 8/:

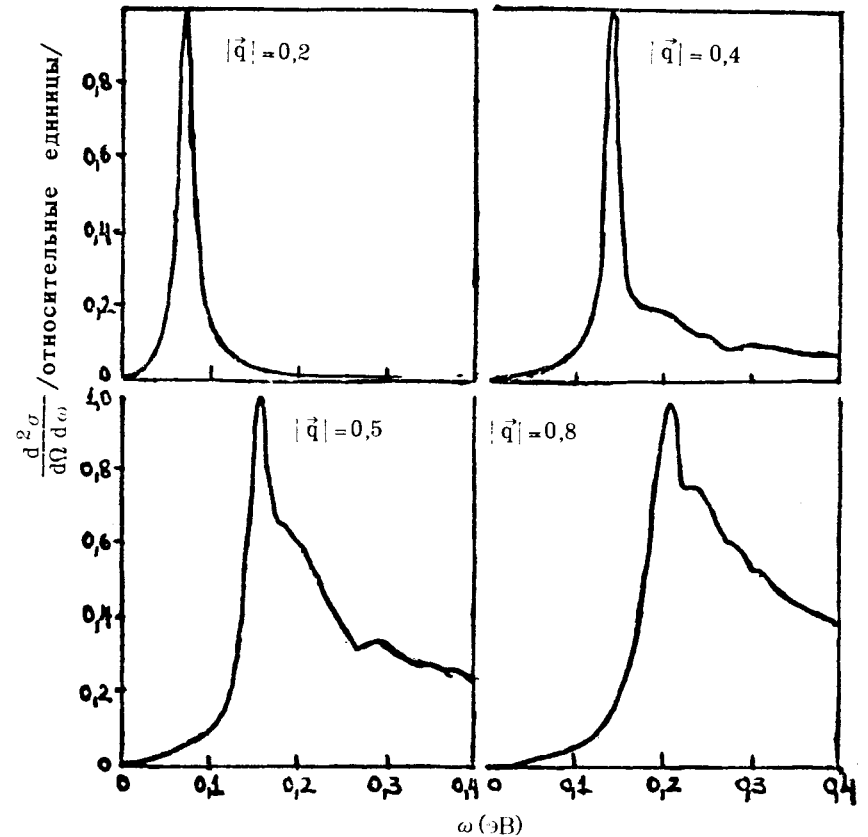


Рис. 7. Теоретический расчет зависимости полного сечения рассеяния в никеле от величины квазиимпульса^{18/}.

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\omega \operatorname{Im} \chi_0^{+-}(\vec{q} = 0,9 \vec{q}_{\max}, \omega) =$$

/24/

$$= \frac{2\pi}{\hbar} \frac{\Delta}{U} - \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \operatorname{Im} \chi_{s.w.}^{+-}(q = 0,9 q_{\max}, \omega) = \frac{2\pi}{\hbar} \frac{\Delta}{U} (1 - 1/2) = \frac{2\pi}{\hbar} \frac{\Delta}{2U}$$

При этом Томпсоном было получено, что для случая сильного ферромагнетика ($\Delta > \epsilon_f$), что соответствует никелю, свободная восприимчивость равна:

$$\text{Im} \chi_0^{+-}(\mathbf{q}, \omega) = \begin{cases} 0, & |y| > 1 \\ \frac{3}{4} \pi \frac{\Delta}{U \delta E} (1 - y^2), & |y| < 1, \end{cases} \quad /25/$$

где $y = (\Delta' - \omega) / \delta E$, $\Delta' = \Delta + \hbar^2 q^2 / 2m^*$ и $\delta E = \hbar^2 q k_f / m^*$; m^* - эффективная масса электрона. Таким образом, ширина диффузного пика, определяющегося $\text{Im} \chi_0^{+-}(\mathbf{q}, \omega)$, равна $\delta E = q / k_f \epsilon_f$. Оценим величину δE . Следуя Маттису^{/20/} примем, что $q_{\text{max}} \leq 0,75 k_f$. Тогда для $q = 0,9 q_{\text{max}}$ найдем, что $\delta E \approx 0,67 \epsilon_f$. Точные расчеты ϵ_f для металлического никеля^{/21/} дают значение $\epsilon_f = 7,6$ эВ. Однако для оценки $\text{Im} \chi_0^{+-}$ в рамках расчета Томпсона, чтобы не нарушать "самосогласованности" приближений, мы воспользуемся оценками ϵ_f для г.н. модели "эквивалентного свободного электронного газа" в парамагнитной области^{/14/}. В рамках этой модели, отвечающей приближениям работы^{/19/}, величина $\epsilon_f = 0,4$ эВ. Таким образом, ширина стонеровского диффузного пика будет равна $\delta E = 0,67 \cdot \epsilon_f = 0,67 \cdot 0,4 = 0,27$ эВ. Ширину спин-волнового пика при $q = 0,9 q_{\text{max}}$ можно принять равной $0,1$ эВ. Поскольку согласно /24/ площади обоих пиков равны для $q = 0,9 q_{\text{max}}$, то, следовательно, амплитуда стонеровского пика будет примерно в 3 раза меньше амплитуды спин-волнового пика. Таким образом, проведенные качественные оценки находятся в согласии с точными численными расчетами работы^{/18/}.

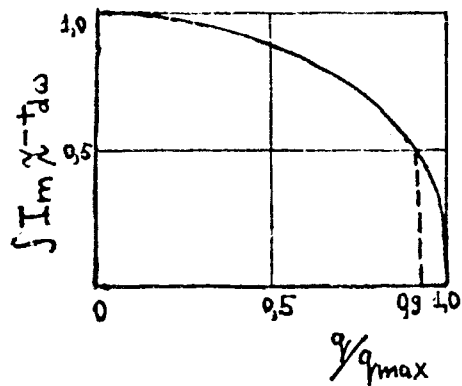


Рис. 8. Результаты численного расчета Томпсона^{/19/} основанного на использовании правила сумм.

4. НЕКОТОРЫЕ ОБОБЩЕНИЯ МОДЕЛИ ХАББАРДА

Подчеркнем еще раз, что анализ Томпсона справедлив только для однозонной модели. Уже для двухзонной модели картина рассеяния качественно и количественно модифицируется /см., напр.,^{/22,23/} /; при этом стонеровское сечение рассеяния может стать заметным и для не слишком больших $q < q_{\text{max}}$. Для двухзонной модели спектр возбуждений, найденный в работе^{/22/}, показан на рис. 9. В отличие от однозонной модели

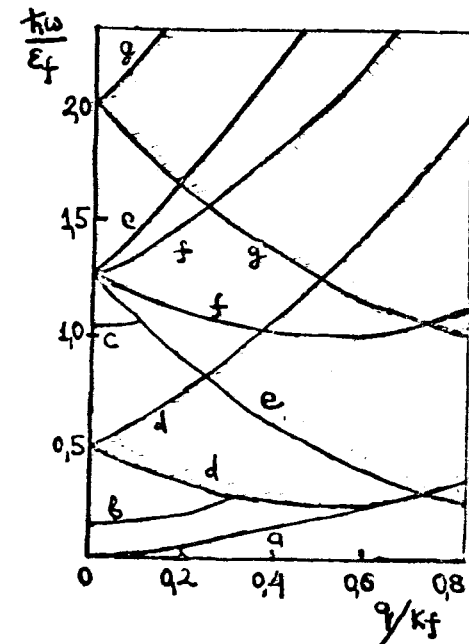


Рис. 9. Спектр возбуждений двухзонной модели Хаббарда, рассчитанный в работе^{/22/}.

возникают четыре квазистонеровских континуума, связанные с переходами внутри одной зоны и между зонами, а также ветвь оптических спиновых волн и т.и. межзонная спин-волновая ветвь. Таким образом, модель коллективизированных электронов обладает весьма богатым спектром возбуждений в "оптической" области.

В настоящем разделе мы рассмотрим для примера несколько более сложную модель, чем /7/, а именно модель Зенера²⁴. Гамильтониан модели Зенера записывается в виде

$$H = \sum_{i\sigma} t_{ij} a_{i\sigma}^+ a_{j\sigma} + U/2 \sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i-\sigma} - 2J \sum_i \sigma_i^z \cdot S_i \quad /26/$$

где $\sigma_i^+ = a_{i\uparrow}^+ a_{i\downarrow}$; $\sigma_i^- = a_{i\downarrow}^+ a_{i\uparrow}$ и $\sigma_i^z = 1/2(a_{i\uparrow}^+ a_{i\uparrow} - a_{i\downarrow}^+ a_{i\downarrow})$ - спиновые операторы коллективизированных электронов, S_i - оператор локализованного спина в узле i , отвечающий правилу Хунда. Перепишем гамильтониан /26/ в k -представлении:

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k a_{k\sigma}^+ a_{k\sigma} + UN^{-1} \sum_{kk'q} a_{k+q}^+ a_k a_{k'-q} a_{k'} - \\ - JN^{1/2} \sum_{kq} [a_{k+q\uparrow}^+ a_{k\downarrow} S_q^- + a_{k+q\downarrow}^+ a_k S_q^+ + \\ + (a_{k+q\uparrow}^+ a_{k\uparrow} - a_{k+q\downarrow}^+ a_{k\downarrow}) S_q^z] \quad /27/$$

Обобщенная поперечная спиновая восприимчивость системы

$$\chi^{+-}(q, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \langle\langle \sigma_q^+(t); \sigma_{-q}^- \rangle\rangle e^{i\omega t} dt \quad /28/$$

вычисляется в приближении хаотических фаз, как и для обычной модели Хаббарда /7/. Полученный результат имеет вид²⁴

$$\chi^{+-}(q, \omega) = \frac{\chi_0(q, \omega)}{1 - [U - 2J^2 \langle S^z \rangle / (\omega - Jn_x)] \chi_0(q, \omega)} \quad /29/$$

где

$$\chi_0(q, \omega) = -N^{-1} \sum_k \frac{n_{k+q} - n_k}{\omega - (\epsilon_k - \epsilon_{k+q}) - \Delta} \quad /30/$$

- восприимчивость в приближении Хартри-Фока; $\Delta = U_{n_x} + 2J \langle S^z \rangle$; $n_x = N^{-1} \sum_k (n_k - n_{k'})$. Аналогично находится поперечная восприимчивость для локализованных спинов:

$$\langle\langle S_q^+ | S_{-q}^- \rangle\rangle_{\omega} = \frac{2 \langle S^z \rangle}{\omega - Jn_x + 2J^2 \langle S^z \rangle \chi_0(q, \omega) [1 - U \chi_0(q, \omega)]^{-1}} \quad /31/$$

Для $q, \omega \rightarrow 0$ найдем спектры спин-волновых возбуждений системы:

20

$$\hbar \omega_{ac} = Dq^2 \quad \text{- акустическая ветвь,} \quad /32/$$

$$\hbar \omega_{op} = E_{op} + D(U E_{op} / J\Lambda - 1)q^2 \quad \text{- оптическая ветвь.}$$

Здесь $E_{op} = J_{n_x} + 2J \langle S^z \rangle$. Физически этот результат соответствует тому, что в системе имеются неэквивалентные спиновые подсистемы коллективизированных и локализованных спинов. Помимо этих двух типов возбуждений имеется еще континуум стонеровских возбуждений

$$\hbar \omega_{q'} = (\epsilon_k - \epsilon_{k+q}) + \Lambda \quad /33/$$

Схематически спектр системы показан на рис. 10. Таким образом, в отличие от модели Хаббарда /7/ модель /27/ содержит

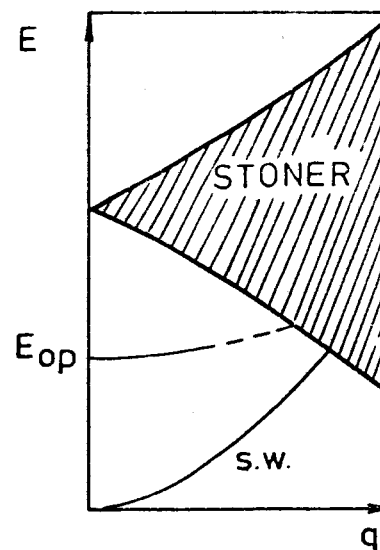


Рис. 10. Схематический вид спектра возбуждений модифицированной модели Зенера²⁴

в спектре возбуждений дополнительную ветвь оптических спиновых волн. Наличие этой оптической спиновой волны связано с тем, что наша система состоит из двух подсистем. Для того

21

чтобы более ясно увидеть это, положим в гамильтониане /27/ $U=0$. Тогда мы придем к гамильтониану (s-d) - модели:

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k a_{k\sigma}^\dagger a_{k\sigma} - JN^{-1} \sum_{kqi} e^{-iqR_i} |S_i^- a_{k+q}^+ a_{k\sigma} + S_i^z (a_{k+q}^\dagger a_{k\sigma} - a_{k+q}^+ a_{k\sigma})|. \quad /34/$$

Рассмотрим вычисление функции Грина $\langle\langle S_q^-; S_{-q}^+ \rangle\rangle_\omega$. В приближении хаотических фаз получим

$$-\frac{1}{\pi} \text{Im} \chi^{-1}(q, \omega) = 2S \delta(\omega - \omega_{ac}(q)) + nx \delta(\omega - \omega_{op}(q)) + \quad /35/$$

$$+ (2S + nx) \frac{v_0}{(2\pi)^3} \int_{\Omega_f} d\vec{q} [\delta(\omega - \epsilon_{k+q\downarrow} - \epsilon_{k\uparrow}) - \delta(\omega - \epsilon_{k\downarrow} + \epsilon_{k-q\uparrow})].$$

В приближении эффективной массы $\epsilon_k = \frac{k^2}{2m^*}$ при $q \rightarrow 0$ найдем, что

$$\omega_{ac}(q) = D_1 q^2; \quad D_1 = \frac{n(1 - 2/3 \epsilon_f x / JS)}{2m^*(2S + nx)} \quad /36/$$

$$\omega_{op}(q) = J(2S + nx) + D_2 q^2; \quad D_2 = \frac{S(1 + \frac{4}{3} \frac{\epsilon_f}{Jn})}{m^*x(2S + nx)} \quad /37/$$

Важным обобщением однозонной модели Хаббарда является модель Хаббарда с (s-d) -гибридизацией, описывающей прямое рассеяние электронов s- и d-зон /25/:

$$H = \sum_{ij\sigma} t_{ij} a_{i\sigma}^\dagger a_{j\sigma} + U/2 \sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i-\sigma} + \sum_k E(k) c_{k\sigma}^\dagger c_{k\sigma} + \sum_{ik\sigma} (V_{ik} a_{i\sigma}^\dagger c_{k\sigma} + \text{c.c.}). \quad /38/$$

Оценки показывают, что величина гибридации V_{ik} может оказаться для некоторых случаев сравнимой с интегралом кулоновского отталкивания U . Выражение для восприимчивости системы с гамильтонианом /38/ было найдено в работе /23/ в приближении хаотических фаз:

$$\chi^{-1}(q, \omega) = \chi^{HF}(q, \omega) \{1 - U/(g\mu_B)^2 \chi^{HF}(q, \omega)\}^{-1} \quad /39/$$

Восприимчивость в приближении Хартри-Фока $\chi^{HF}(q, \omega)$ имеет сложный вид /23/ и в пределе $V_{ik} = 0$ переходит в обычное выражение /14/. Было показано, что в пределе $q \rightarrow 0$, $\omega \rightarrow 0$ в системе существует акустическая спин-волновая ветвь $\hbar\omega = Dq^2$. Помимо этого возникают четыре квазистонеровских континуума /23/

$$\hbar\omega_1 = \omega_{1k\uparrow} - \omega_{1k+q\downarrow}; \quad \hbar\omega_2 = \omega_{2k\uparrow} - \omega_{2k+q\downarrow};$$

$$\hbar\omega_3 = \omega_{2k\uparrow} - \omega_{1k+q\downarrow}; \quad \hbar\omega_4 = \omega_{1k\uparrow} - \omega_{2k+q\downarrow} \quad /40/$$

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Измерения спектра магнитных возбуждений в никеле /16/ и железе /15,17/ были выполнены на стационарных реакторах при помощи трехосного кристаллического спектрометра.

Согласно работам /14-18,21/ зонное расщепление в Ni равно $\Delta = 0,5$ эВ. Таким образом, для измерения стонеровских возбуждений необходим поток нейтронов с энергией в интервале $0,1 \pm 1$ эВ. Напомним, что точке окончания спин-волнового спектра вдоль направления [111] соответствует энергия 80 МэВ, поэтому интересующая нас область передачи энергии заключена в интервале $0,08 \pm 0,5$ эВ.

Ясно, что обычная техника мало подходит для измерения возбуждений столь высокой энергии, даже при наличии горячего источника. Многообещающим методом является метод времени пролета. Импульсные источники нейтронов имеют необходимую мощность для обеспечения достаточной светосилы, а малая ширина импульса позволяет работать при хорошем разрешении и низком уровне фона. Согласно оценкам работы /26/, при $E_0 = 0,5$ эВ и $\Delta E_0 = 0,0045$ эВ, времени вспышки $\tau = 3$ мкс и размерах замедлителя 20×20 см² поток нейтронов, ожидающийся на расстоянии 30 м от ИБР-2, можно считать равным $\phi = 2,5 \cdot 10^4$ н/см.с².

В работе /13/ нами были проведены оценки скорости счета установки при рассеянии такого потока медленных нейтронов на стонеровских возбуждениях. При этом использовались те

оценки для стонеровского сечения рассеяния, которые обсуждались в разделе 3. Был получен следующий результат: ожидаемое число отсчетов за время измерения $t=24$ ч равно $N \sim 200 \div 250$ н/день. Аналогичные оценки для мощного импульсного источника нейтронов ZING^{27/} дают $N \sim 160$ н/день. Таким образом, можно говорить, что порядок величины $N \sim 10^2$ н/день.

Приведенные оценки сверху соответствуют высокой разрешающей способности, позволяющей детально исследовать свойства стонеровских возбуждений. Если же целью эксперимента является простое обнаружение их существования, то достаточно работать с разрешением в десять раз хуже. При этом интенсивность вырастет на порядок и скорость счета повысится.

Таким образом, вышеприведенные рассуждения показывают, что обнаружение и детальное исследование стонеровских возбуждений в переходных ферромагнитных металлах составляет одну из актуальнейших проблем физики магнитного состояния. Более того, следует ожидать, что измерения в "оптическом" диапазоне дадут более интересные результаты, чем те, которые можно предполагать на основании однозонной модели Хаббарда. Последняя модель, отражая основные черты поведения системы, является сильно упрощенной. Мы показали в разделе 4, что уже простейшие обобщения модели Хаббарда дают значительно более богатый спектр, причем именно в "оптическом" диапазоне. При этом в связи с ренормировкой q_{\max} при увеличении значений переданного импульса характер уменьшения сечения рассеяния на спиновых волнах может также модифицироваться. Следует также заметить, что при обсуждении спектра возбуждений системы в настоящей работе мы опирались на приближение хаотических фаз. Спектр стонеровских возбуждений $\hbar\omega_{\vec{q}} = \epsilon_{\vec{k}+\vec{q}} - \epsilon_{\vec{k}} + \Delta$ в более точном приближении^{28/} примет следующий вид:

$$\hbar\omega_{\vec{q}} = \epsilon_{\vec{k}+\vec{q}} - \epsilon_{\vec{k}} + S(\vec{k}+\vec{q}).$$

Насколько хорошо применимо приближение хаотических фаз, можно судить по результатам эксперимента. Таким образом, изучение спектра возбуждений в ферромагнитных переходных металлах представляет собой весьма интересную, хотя и трудную с экспериментальной точки зрения, задачу.

Наши оценки показывают, что использование мощных импульсных источников нейтронов, таких как ИБР-2, позволит

получить такие потоки, что предлагаемый эксперимент станет выполнимым за реальное время измерений.

ЛИТЕРАТУРА

1. Вонсовский С.В. *Магнетизм*. "Наука", М., 1971.
2. Изюмов Ю.А., Озеров Р.П. *Магнитная нейтронография*. "Наука", М., 1966.
3. Marshall W., Lovesey S.W. *Theory of Thermal Neutron Scattering*, Oxford at the Clarendon Press, 1971.
4. Каллуэй Дж. *Теория энергетической зонной структуры*. "Мир", М., 1969.
5. Hubbard J. *Proc.Roy.Soc.*, 1963, A276, p.238.
6. Кондратенко П.С. *ЖЭТФ*, 1964, 46, с.1438.
7. Хомский Д.И. *ФММ*, 1970, 29, с.31.
8. Edwards D.M., Fisher B. *J.Physique*, 1971, 32, p.C1-697
9. Herring C., Kittel C. *Phys.Rev.*, 1951, 81, p.869.
10. Foner S. e.a. *Phys.Rev.*, 1969, 181, p.863.
11. Lederer P., Mills D.L. *Phys.Rev.*, 1966, 148, p.542.
12. Wohlfarth E.P. *Phys.Lett*, 1962, 3, p.17.
13. Куземский А.Л., Чер Л. *ОИЯИ, Р17-9656, Дубна, 1976*.
14. Lowde R D., Windsor C.G. *Adv Phys.*, 1970, 19, p.813.
15. Mook H.A., Nicklow R. *Phys.Rev.*, 1973, B7, p.336.
16. Mook H.A. e.a. *Phys.Rev.Lett.*, 1973, 30, p.556.
17. Lynn J.W. *Phys.Rev.*, 1975, B11, p.2624.
18. Cooke J.F., Davis H L. *AIP Conf.Proc.*, 1972, No.10, p.1218.
19. Thompson E.D. *Phys.Rev.Lett.*, 1967, 19, p.635.
20. Mattis D.C. *Phys.Rev.*, 1966, 151, p.278.
21. Zornberg E I. *Phys.Rev.*, 1970, B1, p.244.
22. Yamada H., Shimizu M. *J.Phys.Soc.Japan*, 1968, 25, p.1001.
23. Куземский А.Л. *Phys.Cond.Matter*, 1974, 18, p.179.
24. Bartel L.C. *Phys.Rev.*, 1973, B7, p.3153.
25. Куземский А.Л. *Acta Phys.Pol.*, 1976, A49, p.169.
26. Ананьев В.Д. и др. *ОИЯИ, Р13-4392, Дубна, 1969*.
27. *Application of a Pulsed Spallation Neutron Source Report of Workshop held at ANL (1973) ANL-8032*.
28. Edwards D.M. *Proc.Roy.Soc.*, 1967, A300, p.373.

Рукопись поступила в издательский отдел
10 января 1979 года.