



Объединенный
институт
ядерных
исследований
Дубна

72 / 2-81

12/1-81

P17-80-551

К.А.Крежов*, Й.Г.Бранков

АНАЛИЗ
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО РАЗЛОЖЕНИЯ
ДЛЯ ВОСПРИИМЧИВОСТИ
ГЕЙЗЕНБЕРГОВСКОГО ФЕРРИМАГНЕТИКА
 $RbNiF_3$ МЕТОДОМ ОПТИМАЛЬНОГО
ПРЕОБРАЗОВАНИЯ

Направлено в журнал "Физика твердого тела"

* Институт ядерных исследований и ядерной
энергетики БАН, София.

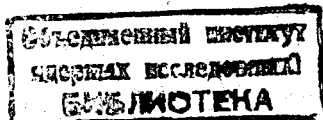
1980

1. ВВЕДЕНИЕ

Соединение RbNiF_3 - прозрачный ферримагнетик / $T_c = 133 \text{ K}$ с гексагональной структурой, пространственная группа $D_{6h}^4 (\text{Rb}_3)\text{mmc}$). Благодаря своим необычным свойствам этот магнитный изолятор является объектом многочисленных экспериментальных исследований^{/1-7/}. В работе^{/1/} показано, что очень хорошее объяснение магнитных и оптических свойств можно получить, исходя из гейзенберговского спинового гамильтониана с двумя обменными константами, для которых из экспериментов по неупругому рассеянию нейтронов были получены значения $J_{AB} = (93.2 \pm 2) \text{ K}$, $J_{BB} = -(21.1 \pm 2) \text{ K}$. В работе^{/2/} на основе анализа экспериментальных данных по двумагнотному Риманову рассеянию получены другие значения для основных обменных констант: $J_{AB} = (69.1 \pm 5) \text{ K}$, $J_{BB} = -(162.7 \pm 5) \text{ K}$, наряду с которыми учтены также взаимодействия внутри слоя и через слой, для которых приняты одинаковые константы $J = 5 \text{ K}$. С помощью этого набора констант было достигнуто очень хорошее согласие и с результатами экспериментов по ЯМР^{/3/}. Если, однако, эти же обменные константы использовать при анализе данных о рассеянии нейтронов на спиновых волнах, то, как утверждают авторы работы^{/1/}, получается полностью фальшивый спин-волновой спектр. По этой причине в^{/1/} высказывается мнение, что результаты ЯМР не могут быть однозначно интерпретированы для оценки обменных констант, тем более, что хорошее согласие с этими результатами получено также в^{/4/} с помощью третьего набора значений: $J_{AB} = 78 \text{ K}$, $J_{BB} = 0 \pm 10 \text{ K}$.

Результаты проведенных на RbNiF_3 экспериментов анализированы теоретически с помощью метода молекулярного поля^{/3,4/} приближения постоянной связи^{/4/}, методов Огучи^{/5/} и Бете - Пайерлса - Вейсса^{/2/}. Полученные оценки для обменных констант сильно отличаются друг от друга.

В настоящей работе мы воспользуемся методом высокотемпературных разложений термодинамических функций в степенной ряд, который позволяет получить значительно более точные результаты для критических параметров данной спиновой системы. Имея надежную теоретическую оценку для критической температуры, мы сможем определить, какой из приведенных выше наборов обменных констант согласуется с экспериментальным значением температуры перехода $T_c = 133 \text{ K}$. Ввиду специфики рассматриваемой спиновой решетки такое исследование представляет также самостоятельный интерес.



Вопросам извлечения физической информации из высокотемпературных рядов посвящен ряд исследований /см., например, /9,10//. Недавно авторами предложен новый метод анализа высокотемпературных рядов - метод оптимального преобразования^{/11/}. Результаты, полученные при анализе как тестовых функций, так и известных рядов для восприимчивости в модели Гейзенберга со спином $S=1/2$ на трех кубических решетках /п.к., о.ц.к., г.ц.к./, показывают, что с помощью этого метода удается существенно уменьшить влияние смущающих "нефизических" особенностей. Полученные оценки для критических параметров говорят о том, что в случае кубических решеток метод оптимального преобразования дает надежные оценки для критических параметров даже при анализе довольно коротких рядов /из шести членов/. Результаты сопоставимы с лучшими из известных в литературе оценками, полученными на основе анализа значительно более длинных рядов /из девяти или десяти членов/.

2. МОДЕЛЬ СПИНОВОЙ СИСТЕМЫ

Каждый магнитоактивный ион Ni^{2+} в соединении $RbNiF_3$ октаэдрично окружен F^- -ионами, причем $2/3$ из этих октаэдров /каждый, содержащий Ni^{2+} -ион в В-узле/ разделяют общую грань, а $1/3$ октаэдров /каждый, содержащий Ni^{2+} -ион в А-узле/ имеют общую вершину /см. рис.1а/. Существенное значение для магнитной структуры /рис.1б/ и магнитных свойств соединения имеют $Ni^{2+}-F^- - Ni^{2+}$ сверхобменное взаимодействие между ближайшими соседними В, В и В', В' узлами /в соседних слоях/ и $Ni^{2+}-F^- - Ni^{2+}$ сверхобменное взаимодействие между ближайшими соседними А, В и А, В' узлами^{/1,2/}.

Расстояние между соседними А и В плоскостями равно расстоянию между соседними А и В' плоскостями, расстояния между соседними В, В и соседними В', В' плоскостями также равны. В узлах решетки локализованы спины с одним и тем же спиновым числом $S=1$.

Известные теоретические и экспериментальные результаты дают основание принять, что в хорошем приближении спиновую систему можно описать с помощью изотропного гейзенберговского гамильтониана с двумя обменными константами:

$$H = -J_{AB} \sum_{ab} \vec{S}_a \vec{S}_b - J_{BB'} \sum_{bb'} \vec{S}_b \vec{S}_{b'} - \bar{\mu} h (\sum_b S_b^z + \sum_a S_a^z) \quad /1/$$

Здесь \vec{S}_c - оператор спина в узле с, \sum_{ab} - сумма по ближайшим соседним А, В и А, В' спинам, $\sum_{bb'}$ - сумма по ближайшим соседним В, В и В', В' спинам, $\bar{\mu} = g\mu_B$ / g - гиромагнитное

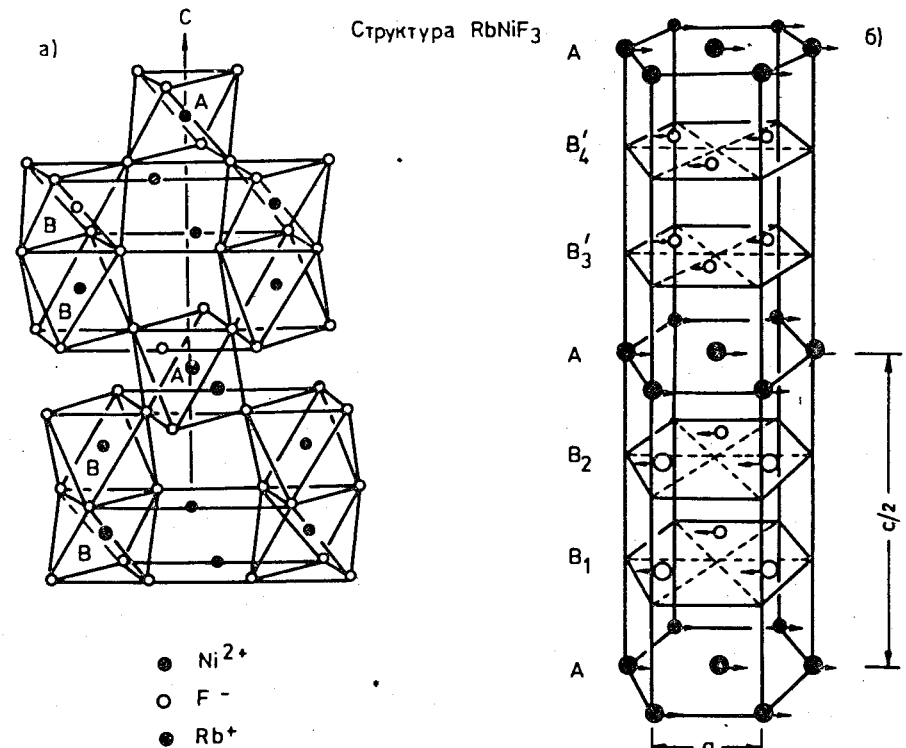
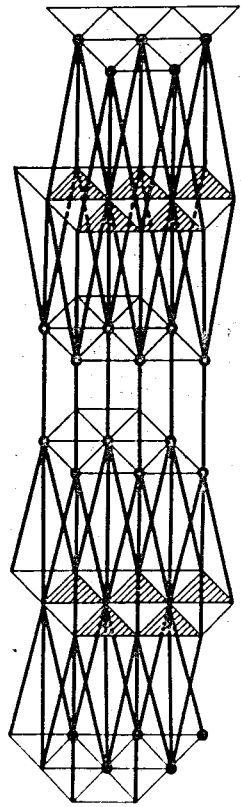


Рис.1. Структура соединения: а/ кристаллохимическая; б/ кристалломагнитная.

отношение, μ_B - магнетон Бора/, h - внешнее магнитное поле вдоль оси z.

В согласии с работой^{/1/} мы учитываем только межплоскостные взаимодействия между ближайшими А и В спинами и ближайшими В и В' / В' / спинами с соответствующими константами $J_{AB} (=J_{AB'})$ и $J_{BB'} (=J_{BB'})$. На рис.2 эти взаимодействия представлены наклонными /для J_{AB} / и вертикальными /для J_{BB} / линиями. Эту модель будем исследовать при произвольных значениях спинового числа S и для различных отношений констант обменных взаимодействий J_{AB} и J_{BB} . В зависимости от знаков обменных констант возможны следующие типы магнитного упорядочения: ферромагнитное ($J_{AB} > 0, J_{BB} > 0$), ферримагнитное ($J_{AB} < 0, J_{BB} > 0$) и антиферромагнитное ($J_{AB} > 0, J_{BB} < 0$) или ($J_{AB} < 0, J_{BB} < 0$). Мы будем рассматривать ферримагнитный тип, $J_{AB} < 0, J_{BB} > 0$, который реализуется в соединении $RbNiF_3$. В этом случае решетка спинов разбивается на две подрешетки: подрешетку спинов в узлах а, принадлежащих А-плоскостям, и спинов в узлах б, принадлежащих В-плоскостям, которые ниже критической



B'
J_{AB}
A
J_{AB}
B
J_{BB}
B
J_{AB}
A
J_{AB}
B'

точки выстраиваются в противоположных направлениях/коллинеарный случай/. Такое упорядочение является ферромагнитным, так как число узлов b в два раза больше числа узлов a .

Для определения критической температуры и критического показателя в случае ферромагнитного типа целесообразнее использовать высокотемпературное разложение для шахматной (staggered) восприимчивости в нулевом магнитном поле. Первые 6 коэффициентов в этом разложении получены и табулированы как функции отношения $R = J_{BB}/J_{AB}$ и спинового параметра $X = S(S+1)$ в работе /8/.

3. МЕТОД ОПТИМАЛЬНОГО ПРЕОБРАЗОВАНИЯ ПЕРЕМЕННОГО

При нулевом магнитном поле шахматная восприимчивость разлагается в степенной ряд:

$$\chi^{stag}(x) = \frac{S(S+1)x}{3} (1 + \sum_{n=1}^{\infty} a_n(R, X) x^n), \quad /2/$$

где $x = |J_{AB}|/kT$.

Функция $\chi^{stag}(x)$ продолжается аналитически в комплексную z -плоскость, и ближайшая к началу координат особенность $\chi^{stag}(z)$ определяет радиус сходимости степенного ряда /2/. Методы анализа существенно зависят от того, соответствует ли эта особенность критической точке или нет. Когда ближайшей к началу координат является физическая особенность, с успехом можно применять разные варианты метода отношений /9,10/.

В простейшем варианте зависимость отношений

$$\rho_n \equiv \frac{a_n}{a_{n-1}} = \frac{1}{x_c} \left(1 + \frac{\gamma-1}{n}\right) + O\left(\frac{1}{n^2}\right) \xrightarrow{n \rightarrow \infty} x_c^{-1} \quad /3/$$

от $1/n$ экстраполируется на предельный случай $n \rightarrow \infty$ с помощью линейных экстраполянтов:

$$\rho_n^{(1)} = n \rho_n - (n-1) \rho_{n-1}, \quad n=2, \dots, N. \quad /4/$$

Из асимптотического поведения ρ_n можно получить оценки для критической точки x_c и критического показателя γ . В случае осциллирующих рядов улучшение оценок достигается при рассмотрении величин

$$\tilde{\rho}_n \equiv \left(\frac{a_n}{a_{n-1}}\right)^{1/2} = \sqrt{\rho_n \rho_{n-1}}, \quad n=2, \dots, N. \quad /5/$$

В ряде случаев необходимо проведение более детального анализа за коэффициентов ряда при помощи экстраполянтов Невилля:

$$\rho_n^{(r)} = \frac{1}{r} [n \rho_n^{(r-1)} - (n-r) \rho_{n-1}^{(r-1)}], \quad 1 \leq r \leq n-1. \quad /6/$$

При наличии смущающих особенностей внутри физического диска $|z| \leq x_c$ необходимо применять метод паде-аппроксимаций /9,10/. Часто удается значительно улучшить поведение коэффициентов ряда, а отсюда и надежность оценок, путем удаления сильно смущающих особенностей из физического диска с помощью предварительного преобразования комплексного переменного /12/.

В случае наличия только одной пары комплексно сопряженных смущающих особых точек оптимальный вид преобразования дается выражением

$$u = \frac{ABz}{\sqrt{(z - Be^{i\phi})(z - Be^{-i\phi})}}. \quad /7/$$

С помощью подходящего выбора параметров преобразования B и ϕ можно добиться удаления в бесконечность любой заданной пары точек z_1, z_1^* . Некоторую точку $x_c^0 > 0$ удобно оставить неподвижной, положив

$$A = \sqrt{1 - 2 \frac{x_c^0}{B} \cos \phi + \left(\frac{x_c^0}{B}\right)^2}. \quad /8/$$

Преобразованная функция

$$g(u) \equiv \chi^{stag}(z(u)) = \sum_{n=0}^{\infty} b_n(B, \phi) u^n, \quad /9/$$

где

$$z(u) = \frac{Bu}{\sqrt{A^2 B^2 - u^2 \sin^2 \phi + u \cos \phi}} \quad /10/$$

при подходящем выборе параметров B и ϕ будет иметь наиболее регулярное поведение коэффициентов степенного ряда. Последнее, однако, будет возмущено внесенными обратным преобразованием /10/ особенностями на вещественной оси, из которых ближе всего к началу координат находится особенность в точке $u=AB$ при $\pi/2 < \phi \leq \pi$ или в точке $u=-AB$ при $0 \leq \phi < \pi/2$. Заметим, что $AB > u_c > 0$, где u_c - образ критической точки x_c . Для частичной компенсации влияния этой особенности в работе /11/ была предложена подходящая процедура корригирования разложения для $g(u)$.

Выбор параметров преобразования основывается на предложенном критерии оптимизации - минимум по B и ϕ формы

$$Q(B, \phi) = \sum_{n=1}^N w_n \left[\rho_n - \frac{1}{u_c} \left(1 + \frac{\gamma-1}{n} \right) \right]_N^2 \quad /11/$$

Здесь точкам ρ_n приписаны значения веса $w_n = n^2 / \sum_{m=1}^N m^2$. В /11/ вместо отношений ρ_n с успехом можно применять и величины $\tilde{\rho}_n$. К оптимально преобразованному степенному ряду для восприимчивости применимы все стандартные методы анализа.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Предварительную оценку критической точки и распределения остальных особенностей, которые возмущают поведение коэффициентов высокотемпературного ряда, можно получить из паде-аппроксимантов к логарифмической производной исходного ряда.

Паде-анализ исходных рядов для шахматной восприимчивости исследуемой нами модели, полученных для отношений обменных констант в интервале значений $-3.0 \leq R \leq -0.2$ и для спина $S=1$, показывают, что основные возмущающие особенности лежат внутри физического диска $|z| \leq x_c$. Поэтому коэффициенты ряда имеют довольно нерегулярное поведение и значительные осцилляции. Осцилляции уменьшаются только в узком интервале значений $-0.8 \geq R \geq -1$.

Преобразования рядов проводились для двух вариантов критерия оптимальности: в первом из них в квадратичной форме /11/ использовались отношения коэффициентов ρ_n , определяемые по формуле /3/, а во втором - величины $\tilde{\rho}_n$, определяемые по /5/. Минимум формы /11/ находился в интервале углов $90^\circ \leq \phi \leq 180^\circ$. Полученные оценки для критических параметров при значениях R ,

Результаты, полученные методом оптимального преобразования

R	К р и т е р и й ρ				К р и т е р и й $\tilde{\rho}$					
	Оптимальные параметры			Метод отношений	Паде-анализ	Оптимальные параметры			Метод отношений	Паде-анализ
	X_c°	B	φ			X_c°	B	φ		
-0.2	0.74	0.826	180°	0.706 ₉ (1.93 ₄)	0.709 ₈	0.74	0.452	180°	0.7099 ₂ (1.964 ₁)	0.719 ₁₁
-0.226	0.70	0.813	180°	0.695 ₈ (1.90 ₃)	0.699 ₅	0.70	0.446	180°	0.6998 ₅ (1.940 ₁)	0.704 ₉
-0.4	0.68	0.746	180°	0.637 ₁ (1.758 ₅)	0.635 ₈	0.68	0.420	160°	0.6407 ₁ (1.788)	0.6391 ₈
-0.6	0.60	0.649	151°	0.5876 ₆ (1.622 ₃)	0.590 ₄	0.60	0.415	148°	0.59250 (1.663 ₁)	0.590 ₄
-0.8	0.58	0.610	140°	0.553 ₁ (1.532 ₆)	0.557 ₁	0.58	0.454	130°	0.5547 ₅ (1.553)	0.557 ₁
-1.0	0.56	0.613	123°	0.5243 ₉ (1.446 ₆)	0.5257 ₃	0.50	0.606	100°	0.5267 ₂ (1.479 ₁)	0.524 ₄
-1.2	0.54	0.617	125°	0.507 ₂ (1.421 ₇)	0.507 ₃	0.60	0.662	92°	0.508 ₁ (1.451)	0.504 ₄
-1.4	0.52	0.502	167°	0.501 ₄ (1.464 ₇)	0.499 ₈	0.50	0.294	180°	0.5096 ₈ (1.527 ₃)	0.496 ₁
-1.6	0.50	0.448	180°	0.489 ₃ (1.442 ₂)	0.492 ₅	0.50	0.269	180°	0.4965 ₇ (1.496 ₂)	0.489 ₃
-1.8	0.50	0.400	180°	0.478 ₃ (1.416 ₈)	0.484 ₂₂	0.50	0.247	180°	0.4860 ₈ (1.470 ₃)	0.472 ₁₂
-2.0	0.48	0.372	162°	0.467 ₃ (1.379 ₁₂)	0.466 ₆	0.48	0.227	180°	0.477 ₁ (1.450 ₄)	0.465 ₉
-2.2	0.46	0.658	117°	0.450 ₂ (1.297 ₈)	0.448 ₁	0.46	0.709	106°	0.4565 ₅ (1.384 ₁)	0.450 ₂
-2.354	0.45	0.535	124°	0.444 ₂ (1.27 ₂)	0.442 ₁	0.45	0.578	114°	0.4489 ₃ (1.340 ₁)	0.438 ₆
-2.6	0.44	0.435	128°	0.433 ₃ (1.22 ₂)	0.4312 ₁	0.44	0.463	120°	0.4367 ₄ (1.274 ₁)	0.428 ₃
-2.8	0.44	0.395	128°	0.424 ₄ (1.186 ₂₄)	0.4226 ₈	0.44	0.412	122°	0.4270 ₁ (1.222 ₁)	0.420 ₂
-3.0	0.44	0.361	128°	0.416 ₄ (1.15 ₃)	0.4145 ₈	0.44	0.374	123°	0.4175 ₁ (1.172 ₁)	0.4117 ₂

приведенных в первой колонке, показаны в таблице. В первых трех колонках данных для каждого из критериев представлены использованные значения для x_c^0 и оптимальные параметры преобразования B и ϕ , которые получаются при применяемой процедуре самосогласованного корригирования преобразованного ряда. В пятой и десятой колонках приведены оценки для критической точки x_c и критического показателя γ /в скобках/, которые получаются при применении соответствующего критерия оптимальности, и указаны характеристики их разброса. Приведенные значения вычислены на основе экстраполянтов Невилля $\rho^{(1)}$, $\rho^{(2)}$, $\rho_5^{(2)}$ и $\rho_6^{(2)}$ /см. /6//. Оценки, полученные путем усреднения паде-аппроксимантов /2,2/, /3,2/, /2,3/ и /1,4/ для логарифмической производной от оптимально-преобразованного ряда, даны в шестой и одиннадцатой колонках для каждого критерия соответственно.

На основе приведенных результатов можно сделать следующие выводы. Преобразование типа преобразования Эйлера¹⁰.

$$u = \frac{Az}{1+z/B},$$

которое является частным случаем /при $\phi = \pi$ / преобразования /7/, оказывается эффективным только для немногих из исследованных нами рядов.

В целом после применения метода оптимального преобразования с частичной коррекцией по отношению к вносимым особенностям достигнута удовлетворительная согласованность между оценками по методу отношений, с одной стороны, и по методу паде-аппроксимантов - с другой. Согласование хорошее и не зависит от того, какая из величин: ρ_n или $\tilde{\rho}_n$ кладется в основу критерия оптимальности преобразования. Разница в оценках критической точки по двум критериям, в общем случае, не превосходит величины разброса соответствующих значений.

Как уже было сказано, приведенные результаты получены путем непосредственного анализа коэффициентов преобразованных рядов, без применения утонченных методов извлечения информации из рядов^{10,13}. Исходя из результатов работы¹¹ такое уточнение оценок вряд ли изменит приведенные оценки более чем на 1-3%. Следует отметить, что паде-аппроксиманты к логарифмической производной, например, для ряда при $R = -1,0$, дают ясное указание о наличии пары комплексно-сопряженных особых точек z , z^* с модулем $|z_1| = 0,7 \div 0,8$ и аргументом $\phi = 117 \div 129^\circ$, которые весьма близки к точкам $Be^{\pm i\phi}$, удаляемым оптимальным преобразованием ($B = 0,61, \phi = 123^\circ$) в случае, когда используются отношения ρ_n . Аналогична и ситуация для ряда при $R = -1,2$.

Все-таки необходимо отметить, что в случае конкретных высокотемпературных рядов для шахматной восприимчивости $RbNiF_3$

введение величины $\tilde{\rho}_n$ в критерий оптимальности преобразования приводит к небольшому систематическому завышению оценок по методу отношений как для критических точек, так и для критических показателей по сравнению с теми, которые получены при использовании ρ_n .

Можно отметить, что для большей части рядов анализ паде-аппроксимантов показывает наличие пары комплексно-сопряженных сдвигающих особенностей, тогда как величина $\tilde{\rho}_n$ эффективна для сглаживания осцилляций в поведении ряда, вызванных наличием возмущающей особенности на реальной оси.

Оценки критического показателя изменяются довольно плавно в интервале $1,15 \leq \gamma \leq 1,96$ с изменением R в интервале $-3,0 \leq R \leq -0,2$. Имея в виду известные затруднения в получении удовлетворительно точной оценки для критического показателя¹³, а также то, что рассматриваемая модель спиновой системы с учитываемыми двумя обменными взаимодействиями имеет подчеркнута "открытый" характер и что в таких случаях действительное асимптотическое поведение ряда достигается при большем числе коэффициентов разложения /особенно при очень больших и очень малых значениях R /, мы считаем, что приведенные оценки для γ могут быть приняты, по всей вероятности, лишь как иллюстративные, а не как указание о нарушении гипотезы универсальности.

На рис.3 представлены оценки возможных пар обменных констант (J_{AB}, J_{BB}), соответствующих оценкам критических точек, полученных путем усреднения данных, представленных в таблице. Показаны возможные пары обменных констант, вычисленные для экспериментально определенной температуры перехода соединения $RbNiF_3$ из ферримагнитного в парамагнитное состояние $T_c^{ЭКСП} = 133K$ /кривая 1/. Представлена также кривая, вычисленная для температуры перехода $T_c = 156K$, которая получается при использовании значений $J_{AB} = 69,1K, J_{BB} = 162,7K$ из работы¹² /кривая 2/.

Необходимо отметить, что предыдущие теоретические оценки температуры перехода, полученные на основе различных модификаций метода эффективного поля¹⁻⁴, сильно отличаются /больше 20% / от экспериментального значения. Наилучшая из них, $T_c = 163K$, получена в работе¹² при рассмотрении квантовомеханической модели спиновой системы в кластерном приближении типа BPW с учетом взаимодействий между ближайшими соседями. В этой же работе получено и значение $T_c = 135K$ при рассмотрении кластерной модели с включением дополнительных взаимодействий между более удаленными соседями в рамках классического BPW-метода. Это значение необходимо считать случайно согласующимся с экспериментальным значением для T_c , если учесть большое число приближений и допущений при рассмотрении модели, которые выводятся исключительно на интуиции авторов работы¹².

