Теор. и матем. физ., 1970, т.3, в.4, с.135-142

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P4-4723

Г.Конвент, Н.М.Плакида

ЛАБОРАТОРИЯ ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

УРАВНЕНИЕ СОСТОЯНИЯ ФЕРРОМАГНИТНОГО КРИСТАЛЛА

1969

P4-4723

Г.Конвент[x/], Н.М.Плакида

УРАВНЕНИЕ СОСТОЯНИЯ ФЕРРОМАГНИТНОГО КРИСТАЛЛА

Направлено в журнал
"Теоретическая и математическая физика"

---

x/ Институт теоретической физики Вроцлавского университета, Вроцлав.

В работе[1] С.В.Тябликовым был предложен новый метод исследования спин-фононного взаимодействия в ферромагнитных кристаллах, основанный на предположении, что обменный интеграл является функцией мгновенного положения атомов, которое меняется вследствие их теплового движения. По сравнению с обычным подходом (см., например,[2] и цитированную там литературу) этот метод не ограничивается учетом только линейных по смещениям атомов членов в разложении обменного интеграла и позволяет учесть самосогласованным образом эффекты ангармонизма колебаний решетки, которые могут быть существенны в определенных случаях. На основе этого метода в работах[1,3] были рассмотрены самосогласованным образом фононные и магнитные возбуждения и исследованы некоторые неупругие процессы, приводящие к затуханию магнитных возбуждений. При этом, однако, объем системы считался постоянным и не рассматривалась зависимость постоянной решетки от температуры, намагниченности и внешнего давления.

В настоящей работе, основываясь на теории ангармонических кристаллов, развитой в работах[4,5], мы получили уравнение состояния ферромагнитного кристалла, позволяющее исследовать единым образом его тепловые, магнитные и механические свойства. При этом для простоты рассмотрения мы ограничились простейшими приближениями: псевдогармоническим для фононной подсистемы и приближением случайных фаз для спиновой подсистемы, которые не учитывают неупругих процессов взаимодействия, приводящих к затуханию элементарных возбуждений в кристалле. Роль этих процессов будет рассмотрена в отдельной работе.

1. Гамильтониан системы. Условия равновесия

Рассмотрим ферромагнитный кристалл, состоящий из N магнитных атомов, образующих простую решетку Браве. Предположим, что спин-спиновое взаимодействие атомов описывается гамильтонианом Гейзенберга, а силы взаимодействия между атомами кристалла определяются произвольной потенциальной энергией $U(\vec{R}_1,\dots,\vec{R}_N)$. Полный гамильтониан системы запишем в виде:

$$\mathcal{H} = H_\ell + H_s + H_1 , \tag{1}$$

$$H_\ell = \sum_\ell \frac{\vec{P}_\ell^{\,2}}{2M} + U(\vec{R}_1,\dots,\vec{R}_N), \tag{1а}$$

$$H_s = -\mu_B H^z \sum_\ell S_\ell^z - \frac{1}{2}\sum_{\ell m} J(\vec{R}_\ell - \vec{R}_m)(\vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_m), \tag{1б}$$

$$H_1 = -\sum_{\ell,a} F_\ell^a R_\ell^a . \tag{1в}$$

$\vec{P}_\ell$ и $\vec{R}_\ell$ – сопряженные импульс и координата атома с массой M в узле решетки ℓ, μ_B – магнетон Бора, H^z – внешнее магнитное поле, S_ℓ – спин атома в узле ℓ, $J(\vec{R}_\ell - \vec{R}_m)$ – обменный интеграл, который будем считать положительным. H_1 описывает действие внешних сил F_ℓ^a, деформирующих решетку кристалла.

Определим равновесные положения атомов ℓ_a в узлах решетки согласно равенству

$$R_\ell^a = \langle R_\ell^a \rangle + u_\ell^a = \ell_a + u_\ell^a , \tag{2}$$

где статистическое среднее $\langle\dots\rangle$ вычисляется по равновесному состоянию кристалла с гамильтонианом (1):

$$\langle\dots\rangle = Sp(e^{-\frac{\mathcal{H}}{\theta}}\dots)/Sp(e^{-\frac{\mathcal{H}}{\theta}}), \quad \theta = kT. \tag{3}$$

Разлагая потенциальную энергию кристалла в ряд по u_ℓ^a – тепловым смещениям атомов, запишем гамильтониан решетки в виде

$$H_\ell = \sum_\ell \frac{P_\ell^2}{2M} + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!}\sum_{1..n} \Phi_{1..n} u_1 \dots u_n , \tag{4}$$

где для сокращения записи мы ввели $u_1 = u_{\ell_1}^{a_1}$ и т.д. и

$$\Phi_{1..n} \equiv \Phi_{\ell_1\dots\ell_n}^{a_1\dots a_n} = \nabla_{\ell_1}^{a_1}\dots\nabla_{\ell_n}^{a_n} U_0(\vec{\ell}_1,\dots,\vec{\ell}_N). \tag{5}$$

Подобное же разложение в ряд по u_ℓ^a обменного интеграла дает:

$$H_s = -\mu_B H^z \sum_\ell S_\ell^z - \frac{1}{2}\sum_{\ell,m}(\vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_m)\sum_{n=0}^{\infty}\frac{1}{n!}\sum_{a_1..a_n} J_{a_1\dots a_n}(\vec{u}_\ell - \vec{u}_m)^{a_1}\dots(\vec{u}_\ell - \vec{u}_m)^{a_n}, \tag{6}$$

где

$$J_{\alpha_1 \ldots \alpha_n}(\vec{\ell}-\vec{m}) = \nabla_\ell^{\alpha_1} \ldots \nabla_\ell^{\alpha_n} J_0(\vec{\ell}-\vec{m}). \qquad (7)$$

Имея в виду учесть ангармонизм колебаний атомов решетки, мы сохраним весь бесконечный ряд по смещениям в (4) и (6) в отличие от обычного гармонического приближения для гамильтониана решетки и линейного приближения для спин-фононного взаимодействия /2/.

Рассмотрим условия равновесия атомов в решетке. Средняя сила, действующая на каждый атом, равна нулю, что легко показать, если рассмотреть усредненное уравнение движения для гейзенберговского оператора импульса $P_\ell^\alpha(t) = \exp(-i\mathcal{H}t) P_\ell^\alpha \exp(i\mathcal{H}t)$:

$$i \frac{\partial}{\partial t} < i P_\ell^\alpha(t) > = < [i P_\ell^\alpha, \mathcal{H}] > = < \frac{\partial}{\partial R_\ell^\alpha}(U + H_s) > - F_\ell^\alpha = 0. \qquad (8)$$

Это условие можно записать в более удобном виде, вводя тензор упругих напряжений $\sigma_{\alpha\beta}$. Согласно определению, работу внешних сил F_ℓ^α при малой однородной деформации кристалла $u_{\alpha\beta}$ можно записать в виде:

$$-\delta < H_1 > = V \sum_{\alpha\beta} u_{\alpha\beta} \sigma_{\alpha\beta} = \sum_{\ell,\alpha} F_\ell^\alpha \delta \ell_\alpha = \sum_{\ell\alpha\beta} F_\ell^\alpha u_{\alpha\beta} \ell_\beta .$$

Учитывая (8), получаем из этого равенства

$$\sigma_{\alpha\beta} = \frac{1}{V} \sum_\ell F_\ell^\alpha \ell_\beta = \frac{1}{V} \sum_\ell < \frac{\partial}{\partial R_\ell^\alpha}(U + H_s) > \ell_\beta . \qquad (9)$$

Для изотропного давления

$$P = -\frac{1}{3} \sum_\alpha \sigma_{\alpha\alpha} = -\frac{1}{3V} \sum_{\ell,\alpha} < \frac{\partial}{\partial R_\ell^\alpha}(U + H_s) > \ell_\alpha \equiv P_\ell + P_s , \qquad (10)$$

где мы ввели давление P_ℓ, связанное с взаимодействием атомов решетки, и P_s, связанное с взаимодействием спинов. Выполняя дифференцирование (16), получим для P_s следующее выражение:

$$P_s = \frac{1}{6V} \sum_{\ell m \alpha} (\vec{\ell} - \vec{m})_\alpha < (\vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_m) \frac{\partial}{\partial R_\ell^\alpha} J(\vec{R}_\ell - \vec{R}_m) > \approx$$

$$\approx \frac{1}{6V} \sum_{\ell m \alpha} (\vec{\ell} - \vec{m})_\alpha < (\vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_m) > < \frac{\partial}{\partial R_\ell^\alpha} J(\vec{R}_\ell - \vec{R}_m) > , \qquad (11)$$

где приближенное равенство записано в предположении малости спин-фононного взаимодействия. Уравнения (9) -(11) определяют зависимост равновесных параметров решетки от температуры и внешних сил. При этом необходимо вычислить статистические средние от потенциальной энергии решетки и обменного взаимодействия. Воспользуемся для этого методом двухвременных функций Грина.

2. Функции Грина

Рассмотрим двухвременные функции Грина от операторов смещений u_ℓ^α и спинов S_ℓ^α /6,7/:

$$G_{\ell\ell'}^{\alpha\beta}(t-t') = \langle\langle u_\ell^\alpha(t) ; u_{\ell'}^\beta(t') \rangle\rangle , \qquad (12)$$

$$G_{\ell\ell'}^s(t-t') = \langle\langle S_\ell^+(t); S_{\ell'}^-(t') \rangle\rangle , \qquad (13)$$

где приняты следующие обозначения для запаздывающей функции Грина:

$$G_{AB}(t-t')=\langle\langle A(t);B(t')\rangle\rangle-i\theta(t-t')\langle[A(t),B(t')]\rangle .$$

Фурье-преобразование функций Грина введем согласно формуле:

$$G_{AB}(t-t')=\frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}G_{AB}(\omega)e^{-i\omega(t-t')}d\omega . \qquad (14)$$

Пользуясь коммутационными соотношениями, получим уравнения движения для функций (12), (13).

2.1. Фононная подсистема. Псевдогармоническое приближение

Дважды дифференцируя функцию Грина (12) по времени t и переходя к фурье-представлению, получаем следующее уравнение движения:

$$M\omega^2 G^{\alpha\beta}_{\ell\ell'}(\omega)=\delta^{\alpha\beta}_{\ell\ell'}+\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n!}\sum_{1..n}\Phi^{\alpha}_{\ell\,1..n}\langle\langle u_1\dots u_n|u^{\beta}_{\ell'}\rangle\rangle_{\omega}-$$
$$-\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n!}\sum_{m\alpha_1..\alpha_n}J_{\alpha\alpha_1..\alpha_n}\langle\langle(\vec u_\ell-\vec u_m)^{\alpha_1}\dots(\vec u_\ell-\vec u_m)^{\alpha_n}(\vec S_\ell\cdot\vec S_m)|u^{\beta}_{\ell'}\rangle\rangle_{\omega} . \qquad (15)$$

Рассмотрим в этой работе низший порядок теории возмущения для двухвременной функции Грина по спин-фононному взаимодействию, как в работе [1], и произведем в правой части (15) расцепление:

$$\langle\langle(\vec u_\ell-\vec u_m)^{\alpha_1}\dots(\vec u_\ell-\vec u_m)^{\alpha_n}(\vec S_\ell\cdot\vec S_m)|u^{\beta}_{\ell'}\rangle\rangle_{\omega}\approx \qquad (16)$$
$$\approx\langle\vec S_\ell\cdot\vec S_m\rangle\langle\langle(\vec u_\ell-\vec u_m)^{\alpha_1}\dots(\vec u_\ell-\vec u_m)^{\alpha_n}|u^{\beta}_{\ell'}\rangle\rangle_{\omega} .$$

Для фононных функций Грина воспользуемся псевдогармоническим расцеплением [4]:

$$\langle\langle u_1\dots u_n|u^{\beta}_{\ell'}\rangle\rangle\approx\sum_{i=1}^{n}\langle\langle u_i|u^{\beta}_{\ell'}\rangle\rangle\langle\prod_{j\neq i}^{n}u_j\rangle . \qquad (17)$$

Приближения (16), (17) не учитывают неупругих процессов рассеяния фононов и спиновых возбуждений и являются приближениями типа случайных фаз или самосогласованного поля для определения элементарных возбуждений системы. В этом приближении, пользуясь трансляционной инвариантностью системы и представляя фурье-разложение функции Грина по координатам в виде

$$G^{\alpha\beta}_{\ell\ell'}(\omega)=\frac{1}{MN}\sum_{kjj'}e^{\alpha}_{kj}e^{\beta}_{kj'}e^{i\vec k(\vec\ell-\vec\ell')}G_{kjj'}(\omega), \qquad (18)$$

получаем следующее выражение для функции Грина:

$$G_{kjj'}(\omega)=\frac{\delta_{jj'}}{\omega^2-\omega^2_{kj}}, \qquad (19)$$

где частоты ω_{kj} и вектора поляризации e^{α}_{kj} определяются из уравнения

$$M\omega^2_{kj}e^{\alpha}_{kj}=\sum_{m\beta}e^{\beta}_{kj}\{e^{-i\vec k(\vec\ell-\vec m)}\nabla^{\alpha}_{\ell}\nabla^{\beta}_{m}\tilde U(\vec\ell_1\dots\vec\ell_N)-$$
$$-\langle\vec S_\ell\cdot\vec S_m\rangle(1-e^{-i\vec k(\vec\ell-\vec m)})\nabla^{\alpha}_{\ell}\nabla^{\beta}_{\ell}\tilde J(\vec\ell-\vec m)\} . \qquad (20)$$

Приближенные значения средней энергии и среднего обменного интеграла вычислены в псевдогармоническом приближении, согласно которому корреляционная функция от $n=2k$ операторов смещения представляется в виде произведения k парных корреляционных функций[4,5]:

$$\tilde{\tilde{U}}(\vec{\ell}_1 .. \vec{\ell}_N) = \exp\{ \frac{1}{2} \sum_{\substack{\ell m \\ \alpha\beta}} < u_\ell^\alpha u_m^\beta > \nabla_\ell^\alpha \nabla_m^\beta \} U_0(\vec{\ell}_1 .. \vec{\ell}_N), \tag{21}$$

$$\tilde{\tilde{J}}(\vec{\ell} - \vec{m}) = \exp\{ \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta} <(u_\ell^\alpha - u_m^\alpha)(u_\ell^\beta - u_m^\beta)> \nabla_\ell^\alpha \nabla_\ell^\beta \} J_0(\ell - m). \tag{22}$$

Парные корреляционные функции находятся на основании спектральной теоремы по функции Грина (19):

$$< u_\ell^\alpha u_{\ell'}^\beta > = -\frac{1}{\pi} \int_0^\infty d\omega \, \mathrm{cth} \frac{\omega}{2\theta} \, \mathrm{Im}\, G_{\ell\ell'}^{\alpha\beta}(\omega + i\epsilon) =$$

$$= \frac{1}{NM} \sum_{kj} \frac{e_{kj}^\alpha e_{kj}^\beta}{2\omega_{kj}} e^{i\vec{k}(\vec{\ell} - \vec{\ell}')} \mathrm{cth} \frac{\omega_{kj}}{2\theta}. \tag{23}$$

Таким образом, система уравнений (19) - (23) позволяет самосогласованным образом определить частоты "фононов" ферромагнитного кристалла. Заметим, что перенормировка фононных частот вследствие спин-фононного взаимодействия в (20) содержит корреляционную функцию спинов $<\vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_m>$, имеющую в точке Кюри θ_c особенность $[\partial <\vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_m> / \partial \theta]_{\theta \to \theta_c} \to \infty$, которая должна приводить к подобной особенности в спектре фононных частот ферромагнитного кристалла[2].

2.2. Спиновая подсистема. Приближение случайных фаз

Дифференцируя функцию Грина (13) по времени t и переходя к фурье-компонентам согласно (14), получаем для спиновой подсистемы:

$$(\omega - \mu_B H^z) \ll S_\ell^+ | S_{\ell'}^- \gg_\omega = \delta_{\ell,\ell'} \, 2 < S_\ell^z > +$$

$$+ \sum_{n=0}^\infty \frac{1}{n!} \sum_{\substack{m \\ \alpha_1 .. \alpha_n}} J_{\alpha_1 .. \alpha_n} \ll (\vec{u}_\ell - \vec{u}_m)^{\alpha_1} \dots (\vec{u}_\ell - \vec{u}_m)^{\alpha_n} (S_\ell^+ S_m^z - S_\ell^z S_m^+) | S_{\ell'}^- \gg_\omega . \tag{24}$$

Рассмотрим здесь также расцепление в низшем порядке по спин-фононному взаимодействию:

$$\ll (\vec{u}_\ell - \vec{u}_m)^{\alpha_1} \dots (\vec{u}_\ell - \vec{u}_m)^{\alpha_n} (S_\ell^+ S_m^z - S_\ell^z S_m^+) | S_{\ell'}^- \gg_\omega \approx$$

$$\approx < \prod_{i=1}^n (\vec{u}_\ell - \vec{u}_m)^{\alpha_i} > \ll (S_\ell^+ S_m^z - S_\ell^z S_m^+) | S_{\ell'}^- \gg_\omega . \tag{25}$$

Спиновую подсистему рассмотрим в приближении случайных фаз, производя расцепление Тябликова для функции Грина[6]:

$$\ll S_\ell^+ S_m^z | S_{\ell'}^- \gg_\omega \approx < S_m^z > \ll S_\ell^+ | S_{\ell'}^- \gg_\omega . \tag{26}$$

Так же, как (16) и (17), расцепления (25) и (26) не учитывают неупругих процессов рассеяния фононов и спиновых возбуждений.

В результате этих приближений, пользуясь трансляционной инвариантностью системы и представляя фурье-разложение спиновой функции Грина по координатам в виде

$$\langle\langle S^{+}_{\ell} \mid S^{-}_{\ell'} \rangle\rangle_{\omega} = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}(\vec{\ell}-\vec{\ell}')} G^{s}_{\vec{k}}(\omega), \tag{27}$$

получаем следующее выражение для функции Грина:

$$G^{s}_{\vec{k}}(\omega) = \frac{2\langle S^{z} \rangle}{\omega - E(\vec{k})}, \tag{28}$$

где энергия спиновых возбуждений $E(\vec{k})$ имеет вид

$$E(\vec{k}) = \mu_{B} H^{z} + \langle S^{z} \rangle \sum_{m} \tilde{\tilde{J}}(\vec{\ell} - \vec{m})\left(1 - e^{-i\vec{k}(\vec{\ell}-\vec{m})}\right). \tag{29}$$

Среднее значение обменного интеграла в псевдогармоническом приближении определяется выражением (22).

Таким образом, учёт колебаний атомов приводит к перенормировке спиновых возбуждений, в результате чего появляется дополнительная температурная зависимость спектра спиновых возбуждений, помимо температурной зависимости от намагниченности $\langle S^{z} \rangle$. Эта дополнительная зависимость обусловлена двумя факторами: перенормировкой обменного интеграла в (22) (множитель $\exp\{\frac{1}{2}\sum_{\alpha\beta}\langle(\vec{u}_{\ell}-\vec{u}_{m})^{\alpha} \otimes (\vec{u}_{\ell}-\vec{u}_{m})^{\beta}\rangle \nabla^{\alpha}_{\ell}\nabla^{\beta}_{\ell}\}$) и зависимостью обменного интеграла от расстояния между атомами, которое определяется из уравнения состояния (10) и является функцией температуры и внешнего давления, а также намагниченности.

Уравнение для намагниченности спиновой системы имеет обычный вид и в случае $S = 1/2$ записывается в виде

$$\frac{1}{\sigma(\theta)} = \frac{1}{N}\sum_{k} \operatorname{cth}\frac{E(\vec{k})}{2\theta}, \qquad \sigma(\theta) = 2\langle S^{z} \rangle. \tag{30}$$

Совместное решение системы уравнений (29), (30) с учётом (22) позволяет найти зависимость намагниченности от температуры.

3. Уравнение состояния ферромагнитного кристалла

Приближенные выражения, полученные в разделе 2, позволяют написать замкнутое выражение для уравнения состояния ферромагнитного кристалла; согласно (10) имеем

$$P = -\frac{1}{3V}\sum_{\ell\alpha} \ell_{\alpha} \frac{\partial}{\partial \ell_{\alpha}} \tilde{\tilde{U}}(\vec{\ell}_{1}, \ldots, \vec{\ell}_{N}) + \frac{1}{6v}\sum_{\ell\alpha} \ell_{\alpha} \langle \vec{S}_{\ell} \cdot \vec{S}_{0} \rangle \frac{\partial}{\partial \ell_{\alpha}} \tilde{\tilde{J}}(\vec{\ell}), \tag{31}$$

где $v = V/N$ и $\tilde{\tilde{U}}, \tilde{\tilde{J}}$ определены уравнениями (21), (22). Корреляционная функция спинов $\langle\vec{S}_{\ell} \cdot \vec{S}_{0}\rangle$ может быть приближенно найдена по функции Грина (27), (28) стандартными методами [6].

Калорическое уравнение состояния ферромагнитного кристалла определяется внутренней энергией. В псевдогармоническом приближении и в низшем порядке по спин-фононному взаимодействию получаем согласно (1):

$$E = \langle H_\ell + H_s \rangle = \sum_{kj} \frac{\omega_{kj}}{4} \mathrm{cth} \frac{\omega_{kj}}{2\theta} + \tilde{\tilde{U}}(\vec{\ell}_1, .., \vec{\ell}_N) - \tag{32}$$

$$-\mu_B H^z N \langle S^z \rangle - \frac{N}{2} \sum_\ell \tilde{\tilde{J}}(\vec{\ell}) \langle \vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_0 \rangle .$$

Полученные уравнения позволяют провести исследование тепловых, механических и магнитных свойств ферромагнитного кристалла. Отметим, например, что из уравнения (31) можно определить коэффициент теплового расширения ферромагнитного кристалла:

$$\alpha = \frac{k}{\ell} \left(\frac{\partial \ell}{\partial \theta} \right)_P = -\frac{k}{\ell} \left[\left(\frac{\partial P}{\partial \theta} \right)_\ell / \left(\frac{\partial P}{\partial \ell} \right)_\theta \right]. \tag{33}$$

Так как производная $(\partial P / \partial \theta)_\ell$,согласно (31), содержит член $[\partial \langle \vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_0 \rangle / \partial \theta]$, имеющий особенность в точке Кюри θ_c , то коэффициент (33) также имеет эту особенность, которая проявляется в быстром росте $\alpha(\theta)$ при $\theta \to \theta_c$ /2,8/.

Более детальное исследование свойств ферромагнитного кристалла будет проведено в отдельной работе на основе некоторых моделей ферромагнетиков.

Литература

1. С.В.Тябликов, Г.Конвент. Препринт ОИЯИ, Р4-3794, Дубна, 1968; Phys. Lett., 27A, 130 (1968).
2. E.Pytte. Ann. of Phys. (USA), 32, 377 (1965).
3. Г.Конвент. Препринт ОИЯИ, Р4-4028, Дубна, 1968; Phys. Lett., 28A, 237 (1968).
4. Н.М.Плакида. ФТТ, 11, 700 (1969).
5. Н.М.Плакида, Т.Шиклош. Phys. stat. sol., 33, 103 (1969).
6. С.В.Тябликов. Методы квантовой теории магнетизма, "Наука", Москва, 1965.
7. Д.Н.Зубарев. УФН, 71, 71 (1960).
8. B.E.Argyle, N.Miyata, T.D.Schultz. Phys. Rev., 160, 413 (1967).

Рукопись поступила в издательский отдел
30 сентября 1969 года.