

О ДИНАМИКЕ ВЫРОЖДЕННЫХ ЛОКАЛЬНЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ В КУБИЧЕСКИХ МЕТАЛЛАХ

С.В.Малеев

Санкт-Петербургский институт ядерной физики РАН
188350 Гатчина, Санкт-Петербургская обл., Россия

Поступила в редакцию 5 августа 1993 г.

Изучается проблема изолированного иона с полным моментом J в кубических металлах с помощью техники псевдофермионов Абрикосова. Получена система обобщенных кинетических уравнений. Рассмотрен пример $J = 5/2$ в случае, когда основным состоянием является квартет $\Gamma_8(\text{CeB}_6)$. Показано, что центральный пик восприимчивости описывается суммой двух лоренцианов, один из которых уже и выше другого. Показано, что такое мультимодовое поведение — общее явление в случае, если вырожденный мультиплет не является дублетом и им не исчерпывается полное число состояний системы.

В твердых телах имеется очень большое число реализаций локальных возбуждений с внутренними степенями свободы. Широкий класс таких возбуждений представляют ионы редких земель и актинидов, характеризующихся полным моментом J . В кристаллическом поле соответствующий $2J+1$ -кратный мультиплет расщепляется на ряд подуровней, переходы между которыми происходят благодаря взаимодействию этого мультиплета с другими степенями свободы кристаллов (электроны проводимости, фононы и так далее), а также из-за обменного взаимодействия соседних ионов друг с другом. В настоящее время происходит интенсивное изучение связанных с этим явлений. Ниже мы обсуждаем свойства изолированного иона с вырожденным основным состоянием в кубическом металле. При этом нас специально интересует случай, когда основное состояние не является крамерсовским дублетом. Физической реализацией такой системы является CeB_6 . В этом случае $J = 5/2$, основным состоянием иона Ce^{3+} является квартет Γ_8 , а возбужденным состоянием дублет — Γ_7 , расстояние между ними равно 46 мэВ [1]. Следует, однако, отметить, что при температуре $T_Q = 3,1 \text{ K}$ в подсистеме ионов Ce^{3+} происходит переход в квадрупольное состояние [2]. Поэтому ионы церия можно считать независимыми при $T \gg T_Q$. Кроме того, ниже мы не учитываем явления, связанных с эффектом Кондо. Согласно [3], в CeB_6 температура Кондо ниже 10 К. Поэтому наша теория в приложении к CeB_6 верна при $T \gg 10 \text{ K}$.

Проблема изолированного редкоземельного иона в кубическом металле изучалась теоретически в [4] (см. также обзор [5]), методом функций памяти Цванцига - Мори. В частности, был рассмотрен пример иона Ce^{3+} в случае, когда основным состоянием является дублет Γ_7 . Ниже мы пользуемся более простым и наглядным методом псевдофермионов, предложенным Абрикосовым [6]. Для основного состояния Γ_7 результаты работ [4,5] в основном совпадают с нашими. Если же нижним уровнем является квартет Γ_8 , то динамическая восприимчивость описывается суммой двух лоренцианов, то-есть центральный пик имеет двумодовую структуру. Такое мультимодовое поведение является характерным для центрального пика, если основное состояние имеет более сильное вырождение, чем крамерсовский дублет.

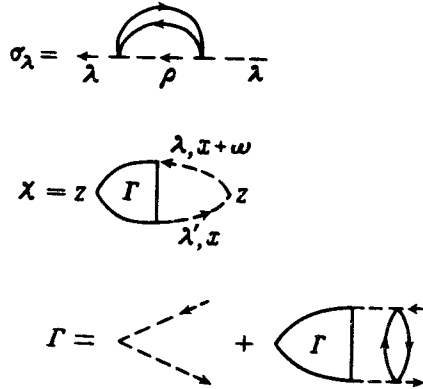
Гамильтониан системы имеет вид

$$H = H_{el} + \sum_{\lambda} (\epsilon_{\lambda} - \mu) a_{\lambda}^{\dagger} a_{\lambda} + (1/2)(g_J - 1) J_{ex} \sum (a_{\rho}^{\dagger} \mathbf{J}_{\rho\lambda} a_{\lambda}) (\psi_{\varphi}^{\dagger} \vec{\sigma}_{\varphi\nu} \psi_{\nu}), \quad (1)$$

где H_{el} — гамильтониан электронов проводимости, a_{λ} — псевдофермионный оператор уничтожения состояния мультиплета λ с энергией ϵ_{λ} , μ — химический потенциал, g_J — g -фактор Ланде и ψ_{φ} — оператор уничтожения электрона в месте нахождения иона. Для того чтобы было занято одно и только одно из состояний λ , надо перейти к пределу $\mu \rightarrow -\infty$ [6]. Мы вычисляем восприимчивость изолированного иона с полным моментом J . В кубическом кристалле она определяется равенством

$$\chi(\omega) = i \int_0^{\infty} dt e^{i\omega t} \langle [J_z(t), J_z(0)] \rangle. \quad (2)$$

В низшем порядке теории возмущений диаграммный ряд для χ показан на рисунке, где пунктирная и прямая линии соответствуют псевдофермионам и электронам.



Реальная часть псевдофермионной собственной энергии $\sigma_{\lambda}(\epsilon_{\lambda})$ соответствует сдвигу уровня λ ; она слабо зависит от температуры и может быть включена в определение ϵ_{λ} . Величина $-\text{Im}\sigma_{\lambda}(\epsilon_{\lambda}) = \gamma_{\lambda}$ определяет ширину уровня λ .

Продолжая с дискретных мнимых частот на вещественную ось нетрудно получить следующую формулу [7-9]:

$$\chi(\omega) = \frac{1}{2\pi i N} \int dx e^{-x/T} [g(x)\Gamma(x, x+\omega)g(x+\omega) -$$

$$-g^*(x)\Gamma(x, x+\omega)g(x+\omega) + g^*(x-\omega)\Gamma(x-\omega, x)g(x) - g^*(x-\omega)\Gamma(x-\omega, x)g^*(x)] J_z. \quad (3)$$

Здесь g и Γ — псевдофермионная функция Грина и вершинная часть; индексы состояний опущены, $g^*(x) = g(x - i\delta)$, мнимые части аргументов функции Γ те же, что и у соответствующих g функций. При выводе (3) было учтено, что Γ является аналитической функцией двух своих независимых переменных с разрезами вдоль вещественной оси [10]. Нормирующий фактор N в (3) равен

$$N = \sum_{\lambda} \langle a_{\lambda}^{\dagger} a_{\lambda} \rangle = \sum_{\lambda} G_{\lambda} \exp(-\epsilon_{\lambda}/T), \quad (4)$$

где G_{λ} — кратность вырождения уровня λ . В этом выражении, а также в (3) мы перешли к пределу $\mu \rightarrow -\infty$. Учитывая аналитические свойства вершины Γ и то, что особенности g -функции лежат на $+\infty$, из-за условия $\mu \rightarrow -\infty$, легко написать уравнение для Γ для вещественных переменных [8,9]. При этом, если мнимые части обоих аргументов одинаковы, интегральный член оказывается малым и соответствующие вершины совпадают с J_z . При различных мнимых частях аргументов полюса функций Грина лежат с разных сторон от вещественной оси и, если пренебречь затуханием, интеграл расходится. В результате, если $\gamma_{\lambda} \ll T$, мы получаем систему уравнений:

$$\begin{aligned} \Gamma_{\lambda'\lambda}(x, x + \omega) = \\ = J_{\lambda'\lambda}^z + 2ig^2 J_{\lambda'\nu} \frac{\epsilon_{\nu\lambda'} N(\epsilon_{\nu\lambda'}) \Gamma_{\nu\mu}(\epsilon_{\nu}, \epsilon_{\nu} + \omega)}{\omega + \epsilon_{\nu\mu} + i\gamma_{\mu} + i\gamma_{\nu}} J_{\mu\lambda}, \end{aligned} \quad (5)$$

где $\epsilon_{\nu\lambda'} = \epsilon_{\nu} - \epsilon_{\lambda'}$, N — функция Планка, проводится суммирование по μ и ν и $g^2 = (\pi/2)[(g_J - 1)J_{ex}N_0]^2$, где N_0 — плотность электронных состояний на уровне Ферми. Это выражение верно, если $g^2 \ll 1$. Система (5) является обобщенным кинетическим уравнением, описывающим переходы между уровнями (недиагональные $\Gamma_{\lambda'\lambda}$) и флуктуациями их заселенностей ($\Gamma_{\lambda\lambda}$) под влиянием возмущения, пропорционального J_z .

Рассмотрим пример иона с $J = 5/2$. Волновые функции имеют вид [4,5]

$$\begin{aligned} \psi_{1\pm} = a | \pm 5/2 \rangle - b | \mp 3/2 \rangle; (\Gamma_7), \\ \psi_{2\pm} = b | \pm 5/2 \rangle + a | \mp 3/2 \rangle, \psi_{3\pm} = | \pm 1/2 \rangle; (\Gamma_8), \end{aligned} \quad (6)$$

где $a = (1/6)^{1/2}$ и $b = (5/6)^{1/2}$. Взаимодействие полного момента J с электронами не коммутирует с гамильтонианом кристаллического поля. В результате, в (5) появляются слагаемые, смешивающие флуктуации заселенностей компонент $\psi_{2\pm}$ и $\psi_{3\mp}$ квартета Γ_8 . Это связано с тем, что отличны от нуля матричные элементы операторов J_{\pm} между состояниями $\psi_{2\pm}$ и $\psi_{3\mp}$. Этим можно пренебречь, если основное состояние — дублет Γ_7 , а расстояние между уровнями $\epsilon \gg T$. В случае же основного состояния Γ_8 и $\epsilon \gg T$ влиянием Γ_7 в первом приближении можно пренебречь и при $\omega \ll \epsilon$ динамическая восприимчивость определяется релаксацией заселенностей состояний квартета. В этом случае смешивание состояний $\psi_{2\pm}$ и $\psi_{3\mp}$ играет определяющую роль. В результате, учитывая, что $\Gamma_{2(3)+,2(3)+} = -\Gamma_{2(3)-,2(3)-} = \Gamma_{2(3)}$, систему (5) можно представить в виде

$$\begin{aligned} (\omega + 62ig^2T/9)\Gamma_2 + 4ig^2T\Gamma_3/3 = 11(\omega + 2i\gamma_2)/6, \\ 4ig^2T\Gamma_2/3 + (\omega + 58ig^2T/3)\Gamma_3 = (\omega + 2i\gamma_2)/2, \end{aligned} \quad (7)$$

где $\gamma_2 = 65g^2T/12 = -\text{Im}\sigma_{2(3)}(0)$ — затухание уровней квартета. Решая эту систему и подставляя результат в (3) для восприимчивости при $\omega \ll \epsilon$, получаем

$$\chi_{rel}(\omega) = \frac{1}{T} \left(\frac{2i\gamma_+ Z_+}{\omega + 2i\gamma_+} + \frac{2i\gamma_- Z_-}{\omega + 2i\gamma_-} \right), \quad (8)$$

где

$$Z_{\pm} = \pm \left[\frac{359 \cdot 11}{9} (\delta_{\pm} - \frac{313}{33}) + 109(\delta_{\pm} - 1) \right] [72(\delta_{+} - \delta_{-})\delta_{\pm}]^{-1}, \quad (9)$$

$$\gamma_{\pm} = g^2 T \delta_{\pm}, \delta_{\pm} = [59 \pm (820)^{1/2}] / 9. \quad (10)$$

Таким образом, центральный пик, описывающий релаксацию заселенностей компонент квартета, имеет двумодовую структуру. Численно имеем: $\delta_{+} = 9,74$; $\delta_{-} = 3,37$; $(\delta_{-}/\delta_{+}) = 0,347$; $Z_{+} = 0,238$; $Z_{-} = 1,57$ и $Z_{-}/Z_{+} = 6,58$. Мы видим, что почти вся интенсивность связана с минусовой модой, которая релаксирует в три раза быстрее, чем плюсовая.

Резонансный вклад в $\chi(\omega)$ имеет тот же вид, что и в [4,5]:

$$\chi_{Res}(\omega) = - \frac{20(1 - e^{-\epsilon/T})}{9(2 + e^{-\epsilon/T})(\omega - \epsilon + 1\gamma_{21})}, \quad (11)$$

где $\gamma_{21} = g^2(10/3)\{\epsilon[3N(\epsilon) + 2] + 35T/12\}$. Это выражение верно и при $T \sim \epsilon$. Формулы (8) и (11) насыщают известное правило сумм:

$$\langle J_z^2 \rangle = -(1/\pi) \int d\omega (\text{Im}\chi_{Rel} + \text{Im}\chi_{Res}) N(-\omega). \quad (12)$$

Заметим еще, что если основным состоянием является дублет Γ_7 , то при $T < \epsilon$ получаются те же результаты, что и в [4,5].

В заключение мы отметим следующее:

1. При выводе (7)-(10) мы ограничились условием $\epsilon \ll T$. Но исходные кинетические уравнения (5) верны при любом соотношении между ϵ и T . Их вывод ограничен условиями $g^2 \ll 1$, $\gamma_p < T$ и $g^2 \ln[E_F/\min(\epsilon_\lambda T)] < 1$. Последнее условие означает возможность пренебрежения поправками, связанными с эффектом Кондо.

2. Уравнения, аналогичные (5), могут быть написаны и в случае взаимодействия с фононами или спиновыми волнами. Однако в этом случае амплитуды переходов между вырожденными состояниями равны нулю, так как плотность состояний соответствующих возбуждений при малых ω стремится к нулю быстрее, чем ω . В результате необходимо учитывать двухквантовые рамановские процессы, как это было сделано в [8] при изучении взаимодействия вырожденного центра с фононами.

3. Мы получили двумодовую структуру центрального пика из-за смешивания флуктуаций заселенностей различных компонент квартета Γ_8 . Если бы мы рассмотрели вместо обычной квадрупольную восприимчивость, то опять получили бы двумодовую структуру, но с другими временами релаксации, соответствующими другим нулям детерминанта четвертого порядка, который определяет свойства решения уравнения (5) в случае четырех диагональных вершин $\Gamma_{\lambda\lambda}$.

В общем случае для мультимодовой структуры центрального пика необходимо выполнение следующих условий: 1. Кратность вырождения основного состояния должна быть больше 2. 2. Кроме рассматриваемого вырожденного состояния в системе должно быть еще хотя бы одно возбужденное состояние. В противном случае [10] мы имели бы $\Gamma \sim J_z$ и из (5) сразу следует одномодовое поведение. Это утверждение полезно проиллюстрировать примером иона с $J = 3/2$. В этом случае, как и выше, нетрудно получить две моды:

$2\gamma_+ = 12g^2T$ и $2\gamma_- = 2g^2T$. Однако уравнение (5) устроено так, что мода $2\gamma_+$ в решении исчезает и мы имеем

$$\Gamma = J_z(\omega + 2i\gamma)/(\omega + 2ig^2T), \quad (13)$$

где $\gamma = (15/4)g^2T$.

Автор считает своим приятным долгом поблагодарить Ж.Росса Миньона за гостеприимство в лаборатории Леона Бриллюэна, где была начата эта работа, и за очень интересные дискуссии относительно свойств системы CeB_6 , явившиеся отправным пунктом для этой статьи.

-
1. E.Zirngiebl, B.Hellbrands, S.Blumenröder et al., Z.Fisk, Phys. Rev. B **30**,4052 (1984).
 2. J.M.Effantin, J.Rossat-Magnod, P.Burlet et al., J. Magn. Magn. Mat. **47-48**, 145 (1985).
 3. S.Kunii, J. Magn. Magn. Mat. **76-77**, 337 (1988).
 4. K.W.Becker, P.Fulde, and J.Keller, Z. Phys. **B28**, 9 (1977).
 5. P.Fulde and M.Loewenhaupt, Adv. In Phys. **33**, 589 (1986).
 6. A.A.Abrikosov, Physica **2**, 5 (1965).
 7. С.Л.Гинзбург, ФТТ **16**, 9 (1974).
 8. С.В.Малеев, ЖЭТФ **79**, 1995 (1979).
 9. С.В.Малеев, ЖЭТФ **57**, 149 (1983).
 10. А.В.Лазута, С.В.Малеев, Б.П.Топерверг, ЖЭТФ **75**, 764 (1978).