

Актуальные проблемы физики конденсированных сред

*Посвящается пятидесятилетию
Кочегарова Бориса Ивановича*

*Посвящается семидесятилетию
Бориса Ивановича Кочелая*

АКТУАЛЬНЫЕ ПРОБЛЕМЫ ФИЗИКИ КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД

Казань

ЗАО «Новое знание»
2004

УДК538.9
ББК 22.31
А43

Научные редакторы:
Профессор Б.З.Малкин
Профессор Ю.Н.Прошин

А43 Актуальные проблемы физики конденсированных сред. – Казань, ЗАО
«Новое знание», 2004. – 404 с.

ISBN 5-89347-221-7

Настоящий сборник посвящен профессору кафедры теоретической физики Казанского государственного университета Борису Ивановичу Кочелаеву и составлен из оригинальных научных статей, написанных ко дню его семидесятилетия его учениками и коллегами. Статьи охватывают широкий круг проблем современной физики конденсированных сред: от физики полимеров до физики сверхпроводников. Объединяет представленные исследования то, что они, во всяком случае, относятся к кругу интересов Б.И.Кочелаева, в ряде работ непосредственно используются развитые им методы и идеи.

Книга предназначена исследователям и аспирантам, интересующимся проблемами квантовой теории конденсированных сред.

Editors:
Prof. B.Z.Malkin
Prof. Yu.N.Proshin

Modern Problems in Condensed Matter Physics. – Kazan, CJC “Novoe
znanie”, 2004. – 404 p.

ISBN 5-89347-221-7

© Кафедра теоретической физики
Казанского государственного
университета, 2004
© ЗАО «Новое знание», оформление, 2004

*Dedicated to
Boris I.Kochelaev
on the occasion
of his seventieth birthday*

**MODERN PROBLEMS
IN CONDENSED MATTER PHYSICS**

Kazan
CJC “Novoe znanie”
2004

ПРЕДИСЛОВИЕ

Профессор кафедры теоретической физики Казанского государственного университета Борис Иванович Кочелаев является наиболее известным представителем Казанской физической школы, созданной С.А. Альтшулером, и одним из ведущих специалистов в мире в области динамики спиновых систем.

Б.И. Кочелаев поступил на физико-математический факультет Казанского университета в 1952 году после окончания средней школы в Вятских Полянах (Кировская область). Свою научную деятельность под руководством С.А. Альтшулера он начал будучи студентом, а затем аспирантом (1957-1960 г.г.) кафедры экспериментальной и теоретической физики. После успешной защиты кандидатской диссертации в Харьковском университете, с 1960 г. по настоящее время Б.И. Кочелаев является сотрудником кафедры теоретической физики Казанского университета – ассистентом, доцентом, профессором, в течение 27 лет (1973-2000) он заведовал кафедрой.

Научная работа Б.И. Кочелаева в 60-70-ые годы была посвящена изучению специфических особенностей спектра возбуждений парамагнитного кристалла, обусловленных спин-фононным взаимодействием. Он разработал теорию релаксационного поглощения и резонансной дисперсии гиперзвука в парамагнитной среде, косвенного спин-спинового взаимодействия парамагнитных ионов через электроны проводимости в полупроводниках и через поле фононов в диэлектриках, ядерной релаксации вследствие электронных спин-спиновых взаимодействий при сверхнизких температурах, исследовал роль дисперсии спектра колебаний кристалла в эффекте Яна-Теллера, вычислил параметры связанных спин-фононных колебаний и установил условия их возникновения. Выполненное совместно с Л.К. Аминовым исследование взаимодействия парамагнитных центров через поле фононов с учетом эффектов запаздывания оказало существенное влияние на развитие теории явлений, обусловленных взаимодействием локализованных электронов через поля статических и динамических деформаций кристаллической решетки.

Существенную роль в выборе направлений исследований Б.И. Кочелаева сыграла его двухместовая стажировка (1963 г.-1964 г.) в Гарвардском университете (США), где он под руководством будущего лауреата Нобелевской премии по физике профессора Н. Блумбергена решил задачу о влиянии спиновой поляризации электронов проводимости и их корреляций на косвенное обменное взаимодействие парамагнитных примесей в металлах. Докторскую диссертацию “Теория динамических эффектов в парамагнитных кристаллах” Б.И. Кочелаев защитил в Казанском университете в 1967 г.

Следующий период научной деятельности Б.И. Кочелаева был посвящен исследованиям нелинейных явлений в парамагнитных твердых телах, подверженных воздействию электромагнитного поля СВЧ диапазона, света,

гиперзвука. Была построена теория кинетических явлений в системе взаимодействующих спинов и фоонов в твердых телах на основе концепции спиновой температуры. На основе этой теории удалось, в частности, объяснить экспериментально обнаруженное лавинообразное нарастание излученных резонансных фоонов при насыщении крыла линии электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) и особенности распространения гиперзвука в резонансной неравновесной парамагнитной среде. Была также построена теория рассеяния света с переворотом спина парамагнитных ионов в кристаллах и дано теоретическое объяснение экспериментально обнаруженного явления сверхрассеяния света при насыщении крыла линии ЭПР. Б.И. Кочелаев предсказал эффект релаксационного поглощения звука и его гигантское усиление СВЧ полем, впоследствии этот эффект был обнаружен в лаборатории Магнитной Радиоспектроскопии Казанского университета.

Вместе со своими учениками Б.И. Кочелаев построил теорию электронного парамагнитного резонанса и спиновой релаксации в так называемых холодных сверхпроводниках с парамагнитными примесями. Было выяснено, что спиновая динамика и магнитные свойства указанных веществ решающим образом определяются двумя явлениями: образованием коллективных спиновых колебаний сверхпроводящих электронов и парамагнитных примесей и возникновением дальнодействующих антиферромагнитных корреляций между парамагнитными примесями. На основе развитой теории удалось объяснить всю совокупность необычных свойств сигнала ЭПР в холодных сверхпроводниках, впервые экспериментально наблюдаемого группой Э.Г. Харахашьяна в Казанском физико-техническом институте.

С конца 80-х годов научные интересы Б.И. Кочелаева сосредоточены в одной из наиболее "горячих" областей современной физики твердого тела – в физике сильно коррелированных электронных систем. После открытия в 1986 году швейцарскими учеными К.А. Мюллером и Дж. Беднорцем высокотемпературной сверхпроводимости (ВТСП), Б.И. Кочелаев включился в исследования этого уникального явления. Природа высокотемпературной сверхпроводимости оказалась очень сложной, и для ее изучения многие мировые научные центры привлекли большой арсенал современных физических методов, включая магнитный резонанс. ВТСП-материалы представляют собой слоистые оксиды меди, в которых основными структурными элементами, ответственными за сверхпроводимость, являются плоскости CuO_2 . Поэтому многие лаборатории предприняли большие усилия для исследования спиновой кинетики ионов меди этой плоскости, но безуспешно, поскольку сигнал ЭПР оказался ненаблюдаем. Измерить скорость релаксации намагниченности удалось лишь благодаря идее Б.И. Кочелаева использовать когерентность спиновой релаксации ионов меди и парамагнитных зондов в плоскости CuO_2 , возникающую вследствие сильных

изотропных обменных взаимодействий между ионами меди и зонда. Эта идея была успешно реализована в совместной работе с группой проф. Б. Элшнера в Дармштадском университете. Экспериментальные исследования на основе этого метода были продолжены в Цюрихском университете группой К.А. Мюллера. Исследования в рамках совместного научного проекта Института Физики Цюрихского университета и кафедры теоретической физики Казанского университета позволили выявить природу необычно быстрой электронной спиновой релаксации и предложить модель обнаруженного фазового расслоения на наноразмерные металлические и диэлектрические области в плоскости CuO_2 .

Открытие высокотемпературной сверхпроводимости в слоистых купратах, в которых важную роль играют флуктуации антиферромагнитного обменного взаимодействия между ионами меди, вызвало повышенный интерес к исследованиям низкоразмерных магнетиков. Б.И. Кочелаев вместе со своим учеником С.И. Беловым построил теорию магнитных и кинетических свойств двумерных гайзенберговских антиферромагнетиков на основе представлений о спиновых волнах в среде с топологическими возбуждениями – скирмионами. Новый подход позволил определить в рамках единого приближения длину спиновой когерентности, магнитную восприимчивость, скорость ядерной спиновой релаксации для температурного диапазона, включающего как классическую ренормированную, так и квантовую критическую области.

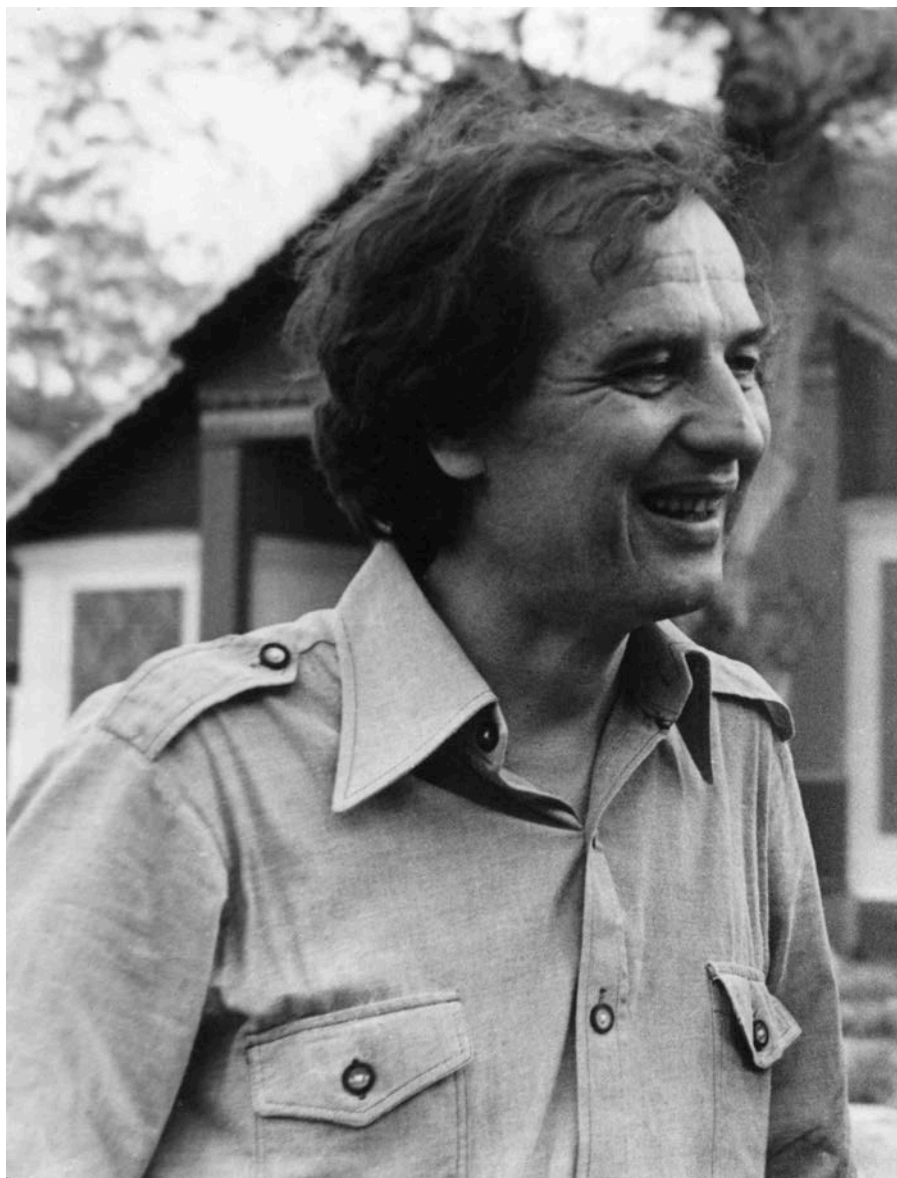
В работах Б.И. Кочелаева, выполненных совместно с группой проф. Лойдла и д-ра Круг фон Нидда в последние годы, была исследована роль кооперативного эффекта Яна-Теллера в электронной спиновой кинетике и построена теория этого эффекта в веществах, обладающих гигантским магнетосопротивлением.

Выполненные Б.И. Кочелаевым исследования по теории ядерной и электронной спин-решеточной релаксации, теории спектров магнитного резонанса в диэлектриках, металлах и сверхпроводниках приобрели мировую известность. Настоящая книга является свидетельством признания его научных достижений и подтверждением глубокого уважения со стороны его многочисленных учеников и коллег.

Мы искренне благодарны авторам статей за плодотворное сотрудничество. Мы признательны Р.Г. Деминову и Л.А. Ваккасовой за помощь при работе над рукописями, а также всем, кто принимал участие в издании этого сборника.

Малкин Б.З.
Прошин Ю.Н.

Казань, март 2004 года



Профессор Борис Иванович Кочелаяев в конце семидесятых
Professor Boris Kochelaev in the late seventies

ИЗДАЛЕКА

География – наука незмоциональная. Нравится тебе местность или нет, она должна быть на карте. Но, глядя на карту, мы испытываем эмоции. Я – часто весьма острые. Не был в Париже, а как хотелось! Мог побывать во Флоренции, бывая неоднократно в Италии, но не хватило настойчивости. Жалею.

Теперь, когда я далеко от страны, где прожил большую часть своей жизни, смотрю на карту СССР, которого уже нет, мысленно, а иногда и буквально перечисляю города, в которых жили и живут мои друзья. К счастью, никакие политические катаклизмы не изменили наших отношений. Хочу верить, что для моих друзей я остался тем, кем был до 1991-го года. Где бы мы – и они, и я – ни жили. Приглашение принять участие в этом сборнике доказывает, что, похоже, я прав.

Для меня Казань – город друзей. А всё начиналось с того, что мне, молодому доктору наук, в 1960-м году, в Харькове посчастливилось. Меня пригласили выступить оппонентом по кандидатской диссертации молодого учёного из Казани Бори Кочелаева. Насколько помню, с самого начала я не величал Бориса Ивановича по имени-отчеству. Посчастливилось мне по двум причинам. Первая. Диссертация Кочелаева “Некоторые вопросы теории спин-решёточного взаимодействия в ионных кристаллах” была очень хорошей, а для не слишком опытного оппонента это немаловажно. Вторая причина *для меня* даже важнее. Особенно теперь, когда вспоминаешь... Единственный раз в своей жизни я выступал в паре со своим учителем Ильёй Михайловичем Лифшицем. Защита запомнилась ещё тем, что неожиданно (насколько помню, не только для харьковчан, но и для диссертанта) появилась съёмочная группа журнала “Советский Союз”. Было такое яркое, красочное, пропагандистское издание.

Машины времени не существует. Но воспоминания переносят нас не только из одного места в другое, но и непринуждённо перемещают по оси времени, не придерживаясь последовательности. Не могу восстановить порядок моих приездов в Казань, моих встреч с сегодняшним юбиларом. Но было их немало. И по разным поводам.

Похоже, что первый раз приехал в Казань со своим аспирантом. Он защитил диссертацию на учёном совете в Казани. Хотя не помню, кто были у него оппоненты, эпизод я описал в небольшом очерке “Заново знакомлюсь с С.А. Альтшулером”, опубликованном в сборнике, выпущенном к 90-летию Семёна Александровича. Здесь уместно сказать, что для меня Б.И. Кочелаев – ближайший и, я бы сказал, лучший ученик Семёна Александровича Альтшулера. Написал и вспомнил. Я в гостях у

Кочелаяевых вместе с Семёном Александровичем. Хотя в гостях учитель, обстановка семейная.

Несколько раз в Казани оппонировал, бывал на конференциях. Ощущение того, что Казань – город друзей, постепенно углублялось. Не было бы этого чувства, не поехал бы я в Казань с младшей дочерью в дни её школьных каникул. Эта поездка оставила у нас обоих приятнейшие воспоминания. Такие, которые остаются, когда проводишь время среди друзей.

Признаюсь, я не турист. Я, скорее, удобник. Когда меня приглашают на пикник, то первая мысль, приходящая в голову, о том, что будет неудобно. В Казани, в основном заботами Кочелаяевых, я получил незабываемые впечатления. Пикник на высоком берегу Волги я не забуду никогда. И какую-то удивительную уху, чтобы изведать которую пришлось оторваться от основной массы выехавших на природу участников Конференции по физике низких температур с Борисом, его друзьями, учениками и сотрудниками (надеюсь, я ничего не перепутал).

Я нарочно не затрагиваю нашего общения на темы теоретической физики. Мы, несомненно, жители одной страны – квантовой теории конденсированного состояния. Мы хорошо всегда понимаем друг друга, говорим на одном языке. Но страна это большая. И, скорее, напоминает конфедерацию, чем федерацию. Не могу похвастать, что в тонкостях знаком с тем, чему посвящены работы Кочелаяева и его учеников. Знаю и это знают все, что результаты важны, интересны, признаны во всём мире и определяют движение вперед той сложной области теории твёрдых тел, от которой зависит развитие и физики магнитных явлений, и радиофизики.

Одну деталь научной биографии Бориса Кочелаяева всё же хочу упомянуть. В 60-70 годы была хорошая традиция. Будущие доктора наук, чьи диссертации были посвящены теории твёрдого тела, могли выяснить отношение своих коллег к их работе, представив её до защиты на обсуждение Научного совета по теории твёрдого тела при Президиуме АН СССР. Руководил Советом И.М. Лифшиц. Отзыв Совета за подписью Ильи Михайловича на докторскую диссертацию Бориса Ивановича “Теория динамических эффектов в парамагнитных кристаллах” подтверждает высокую оценку его результатов.

Наша дружба оказалась не бесплодной. С 1981-го по 1984-й годы у нас был “общий” аспирант Юра Прошин. У нас дома он назывался Юра из Казани. По-моему, его судьба сложилась очень успешно: скоро 10 лет, как он доктор физико-математических наук. Горжусь тем, что с помощью Юры заинтересовал казанских физиков современной электронной теорией нормальных металлов. Но посмотрите в название диссертаций Юры Прошина: кандидатская – “*Спиновая динамика электронов проводимости в условиях магнитного пробоя*”, докторская – “*Теория магнитного пробоя с переворотом спина*”. *Спин* – знак, утвержда-

ющий верность школе, принадлежность к ученикам Бориса Ивановича Кочелаева. Когда Юра осваивал новую для себя тематику, от Бориса Ивановича требовалась научная широта взглядов и уверенность в правильности выбора тематики. Он их в полной мере проявил, что было отнюдь непросто при той разобщённости, которая характеризует любую конфедерацию, в частности, и теорию конденсированного состояния.

Мы с Кочелаевыми дружили семьями, хотя Наташа бывала у нас в Москве значительно реже, чем Борис, а моя жена Элла в Казани никогда не была. Так бесконечно грустно, что нельзя эти слова адресовать им обоим. Встречались мы не только в Казани. Например, в Таллинне. И город уютный, и компания подобралась хорошая. Очень приятно вспоминать. Помню даже, что обедали в каком-то экзотическом месте. Вот только повод – конференцию, которая была причиной пребывания в Таллинне, забыл.

В развитии наших отношений с Борисом есть, казалось бы, незначительная, но доставившая мне радость, случайность. Дело в том, что, приезжая в Москву, останавливался Борис, как правило, у друзей, живших неподалеку от нашего дома. При размерах столицы – немаловажная удача, позволявшая общаться чаще, чем было бы, если бы после вечернего визита к нам приходилось проделывать долгий и утомительный путь куда-то на другой конец города. С удовольствием вспоминаю наши долгие застолья, разговоры обо всём на свете. Что же привлекает меня в Борисе? Придётся юбиляру прочесть слова, которые мы редко произносим друг другу в неюбилейные дни.

Прежде всего, интеллигентность. Интеллигентность, если она истинная, имеет ту особенность, что она естественна. Нельзя притвориться интеллигентом. Никогда не получается. Боря – настоящий интеллигент. Мне очень нравится спокойная манера поведения Бориса (боюсь, не всегда она соответствует его внутреннему состоянию, но это делает его манеру лишь более достойной высокой оценки). Острота Козьмы Пруtkова: “Специалист подобен флюсу”, – к Борису не имеет отношения. Он – глубоко образованный человек с широкими интересами. И последнее, что я хочу отметить. По значению для меня – отнюдь не последнее. Речь идёт вот о чём. У Бориса ощущалось спокойное понимание происходившего в стране. Без часто встречавшегося надрыва, без прития и без демонстративного (на кухне) неприятия. Довольно редкое качество, особенно в том кругу, в котором я вращался.

Вспоминаю свои визиты к Кочелаевым. В квартире какой-то непривычный и удивительно приятный патриархальный дух. У нас и у большинства наших друзей, живших значительно западней, чем Кочелаевы, война разрушила полностью тот патриархальный уют, который помнится с детства и по которому

тоскует душа. Особенно в старости. И особенно теперь, когда не удалось перевезти с собой ни все книги, заполнявшие нашу московскую квартиру, ни коллекцию гуцульского стекла, стоявшую рядом с книгами.

И всё же, Борис, будете в Соединённых Штатах, обязательно появитесь. Ведь дух дома, в конечном итоге, всё же создают не предметы, а люди. А мы с Эллой, как всегда, будем Вам очень рады. И ведь у Вас есть долг: были в Бостоне и не смогли зайти. Ждём.

Каганов М.И.

Belmont, MA, USA. Февраль 2004г.

ВЛИЯНИЕ ДИАМАГНИТНОГО РАЗБАВЛЕНИЯ НА СПИНОВУЮ ДИНАМИКУ В МАНГАНИТАХ

В.А. Ацаркин¹, В.В. Демидов¹, Д.Г. Готовцев¹, Н.Е. Ногинова^{1,2}

¹ *Институт радиотехники и электроники РАН, 125009 Москва*

² *Norfolk State University, 700 Park Ave, Norfolk VA, 23504, USA*

В магниторазбавленных кристаллах $\text{LaMn}_x\text{Ga}_{1-x}\text{O}_3$ исследованы спектры ЭПР ионов Mn (диапазон концентраций $0.02 \leq x \leq 1$), а также ЯМР и спин-решеточная релаксация ядер ^{69}Ga и ^{71}Ga (при $0 \leq x \leq 0.2$). Анализ спектров ЭПР позволил проследить за процессом обменного сужения, приводящим к образованию единой линии лоренцевой формы при $x \geq 0.2$. Подтвержден переход от антиферромагнитного к ферромагнитному типу спиновой упорядоченности при диамагнитном разбавлении манганита галлием, начиная с $x = 0.8$. При $x = 0.1$ обнаружено аномальное уширение и расщепление спектра ЭПР при охлаждении, что интерпретируется как результат термоактивированного внутреннего движения с характерной энергией $E_a \sim 50$ мэВ. Исследование ядерной спин-решеточной релаксации галлия в диапазоне температур 190-390 К также свидетельствует о наличии в образцах внутреннего движения с тем же значением E_a . Обсуждается модель термоактивированных реориентаций электронных орбиталей ионов Mn^{3+} , подверженных эффекту Яна-Теллера.

1. Введение

В последние годы широкий интерес привлекли легированные редкоземельные манганиты – вещества с общей формулой $\text{LaMn}_{1-y}\text{Me}_y\text{O}_3$, где Me – двухвалентный металл (Ca, Sr и т.д.), см., напр., обзоры [1-4]. Эти материалы, являющиеся примером систем с сильными электронными корреляциями, обладают рядом необычных магнитных и транспортных свойств, из которых наибольший интерес вызывает колоссальный магниторезистивный эффект (КМР). Природа эффекта обычно связывается с механизмом "двойного обмена", который сопровождается спин-зависимым движением делокализованных электронов между ионами Mn^{3+} и Mn^{4+} . Двойной обмен не исчерпывает, однако, всех особенностей поведения манганитов. Ионы Mn^{3+} (эффективный спин $S = 2$), составляющие основную решетку, подвержены эффекту Яна-Теллера: октаэдр ближайших ионов кислорода искажается вдоль одной из осей в соответствии с выбором орбитали $d_{3x^2-r^2}$ либо $d_{3y^2-r^2}$ в кристаллографической плоскости (ab). Поэтому перескок электрона с Mn^{3+} на Mn^{4+} означает не только смену заряда и спина, но и перестройку ближайшего

окружения. Физическая картина этих явлений пока далека от полной ясности и вызывает оживленную дискуссию в литературе.

При исследовании проблем, связанных с КМР-манганитами, полезно сосредоточиться на свойствах базового соединения LaMnO_3 , содержащего только трехзарядные ионы марганца. Это вещество не переходит в металлическое состояние, а магнитное упорядочение, возникающее ниже $T_N = 140$ К, представляет собой антиферромагнетик с чередованием ферромагнитных плоскостей (ab) с противоположно направленными намагниченностями. Установлено (см., напр., [5,6]), что в широком диапазоне температур вплоть до $T_J = 750$ К ян-теллеровские орбитали и соответствующие искажения решетки для соседних ионов Mn^{3+} в плоскости (ab) кристаллов LaMnO_3 взаимно перпендикулярны, т.е. вытянуты вдоль осей x и y в шахматном порядке. При $T < T_J$ этот орбитальный порядок соответствует кооперативному статическому эффекту Яна-Теллера. С повышением температуры до $T > T_J$ происходит фазовый переход в более симметричное состояние, отвечающее динамическому кооперативному эффекту Яна-Теллера. Этот переход проявляется, в частности, в значительном уменьшении ширины линии ЭПР [7-9].

Примечательно, что при добавлении в LaMnO_3 каких-либо примесей (не только двухвалентных щелочноземельных ионов, но и диамагнитных трехвалентных ионов типа Ga^{3+} , не влияющих на зарядовое состояние марганца) статическое орбитальное упорядочение становится менее устойчивым, что ведет к понижению T_J [10-15]. При этом обменное взаимодействие между ионами марганца приобретает ферромагнитный характер. Ответ на возникающие здесь вопросы может дать изучение изоморфных твердых растворов LaMnO_3 - LaGaO_3 . Это позволит проследить за эволюцией спинового обмена и орбитальных корреляций от их возникновения на уровне элементарных процессов до того момента, когда они приобретают коллективный характер и дают картину, наблюдаемую в LaMnO_3 и КМР-материалах.

Магнитные, структурные и проводящие свойства системы LaMnO_3 - LaGaO_3 на интегральном уровне изучались в работах [10-17]. Информацию о локальной спиновой динамике можно получить методами магнитного резонанса и спиновой релаксации, что и составило цель данной работы.

2. Экспериментальная методика

Опыты проводились на серии монокристаллических образцов состава $\text{LaMn}_x\text{Ga}_{1-x}\text{O}_3$ в диапазоне концентраций марганца $0 \leq x \leq 1$. Кристаллы с $x \leq 0.2$ выращены по методу Чохральского [16], а с более высокими концентрациями – зонной плавкой. Концентрация всюду указана для шихты. Данные рентгеноструктурного анализа подтвердили однофазность всех

исследованных образцов; они соответствуют известной для данного материала орторомбической структуре $Pbnm$ типа O' ($c/\sqrt{2} < a, b$) при $x \geq 50\%$ и O^* ($a, b \sim c/\sqrt{2}$) при меньших концентрациях Mn. Эволюция постоянных решетки a, b и c с изменением x соответствует литературным данным [11,13].

Спектры ЭПР изучались в ИРЭ РАН (Москва) на спектрометре ER-200 фирмы Bruker (рабочая частота 9.6 ГГц). Использовалась модуляция внешнего магнитного поля B_0 с частотой 100 кГц; при этом синхронный детектор регистрировал сигнал производной ЭПР-поглощения по магнитному полю. Температурные зависимости в диапазоне 4.2 - 300 К снимались с помощью криогенной системы Oxford (точность установки температуры ± 1 К). Интенсивность ЭПР-поглощения (χ_{EPR}) определялась двойным интегрированием этого сигнала либо аппроксимирующей его функции. Для абсолютной калибровки использовался стандарт MgO:Mn .

Эксперименты по ЯМР и спин-решеточной релаксации ядер и выполнены в Университете Норфолка на импульсном ЯМР спектрометре с магнитным полем 7 Тл в температурном диапазоне 190-380 К. Основные исследования проведены на ядрах ^{69}Ga и ^{71}Ga (рабочие частоты 72 МГц и 91.5 МГц, соответственно), некоторые измерения сделаны также на ^{139}La (42.1 МГц). Минимальная длительность $\pi/2$ -импульса составляла 1.5 мкс, что позволяло возбуждать и наблюдать (после фурье-преобразования спада свободной индукции) квадрупольно расщепленный спектр ядер Ga. Время спин-решеточной релаксации ядер (T_{1n}) измерялась методом насыщения-восстановления, время поперечной спин-спиновой релаксации (T_{2n}) – по затуханию спинового эха.

3. Результаты и обсуждение

А. ЭПР

На рис. 1 показан ряд спектров ЭПР, полученных при комнатной температуре на образцах с различными концентрациями Mn (показаны у кривых). Видно, что при $x = 0.02$ спектр состоит из огромного числа относительно узких линий; они сильно перекрываются и резко анизотропны. Эта картина обусловлена тонкой и сверхтонкой структурой ионов Mn^{3+} ($S = 2$), Mn^{4+} ($S = 3/2$), Mn^{2+} ($S = 5/2$) и, возможно, Mn^{5+} ($S = 1$), каждый из которых в структуре перовскита дает 4 магнитно-неэквивалентных комплекса. Количественная расшифровка этого спектра представляется нереальной. С ростом x спектр постепенно упрощается, причем в центре (при $g \sim 2$) появляется и растет линия лоренцевой формы. При $x \geq 0.2$ она становится доминирующей, а ее интегральная интенсивность (χ_{EPR}) примерно соответствует полной концентрации парамагнитных ионов в образце.

Температурные зависимости спектров ЭПР в образцах с концентрациями марганца $x \geq 0.2$ показаны на рис. 2. При достаточно высоких температурах эти

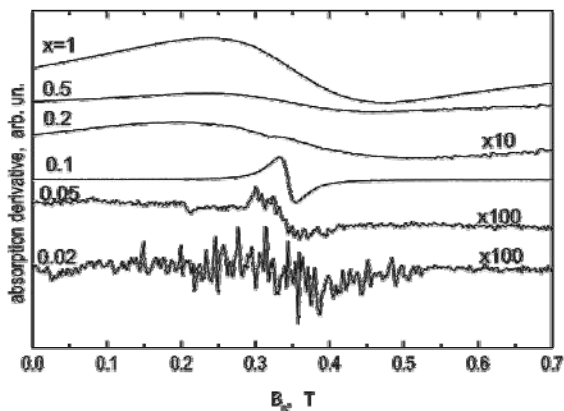


Рис. 1. Спектры ЭПР кристаллов $\text{LaGa}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3$ при комнатной температуре. Концентрации марганца (x) указаны у кривых

ными магнитных измерений [11,13]. Отметим, что в обоих случаях зависимости $\chi_{\text{EPR}}(T)$ (на рисунках не показаны) в высокотемпературной области выходят на закон Кюри-Вейсса с положительными (ферромагнитными) значениями характерной температуры $\theta \sim 110$ К. Явных признаков магнитного упорядочения при $x = 0.2$ в исследованном температурном диапазоне не обнаруживается, однако положительная кривизна функции $\chi_{\text{EPR}}^{-1}(T)$ и рост ширины линии при охлаждении ниже 50 К указывают на присутствие суперпарамагнитных кластеров.

Очевидно, что наблюдаемая эволюция спектра с ростом концентрации Mn объясняется обменным сужением. Этот эффект хорошо известен в концентрированных парамагнетиках и, в частности, наблюдался в LaMnO_3 [18,7,8,19]. Показано, что ширина обменно-суженной линии ЭПР в этом случае хорошо описывается формулой [20,18]

$$\Delta = \frac{M_2^0}{J} f(T), \quad (1)$$

где J – энергия обменного взаимодействия (с учетом всех соседей парамагнитного центра), M_2^0 – второй спектральный момент в отсутствие обмена, a множитель

$$f(T) = \frac{C}{T\chi(T)}, \quad (2)$$

введенный Хьюбером [20], учитывает относительно слабую монотонную температурную зависимость, наблюдаемую вдали от критических точек и 16

спектры хорошо аппроксимируются одной либо двумя перекрывающимися линиями лоренцевой формы. Резкое ослабление сигнала в LaMnO_3 ($x = 1$) при $T < 140$ К связано с антиферромагнитным фазовым переходом. Сдвиг и искажение линий, возникающие при охлаждении ниже 140 К ($x = 0.8$) и 85 К ($x = 0.5$) свидетельствуют о возникновении при этих температурах ферромагнитного порядка, что согласуется с дан-

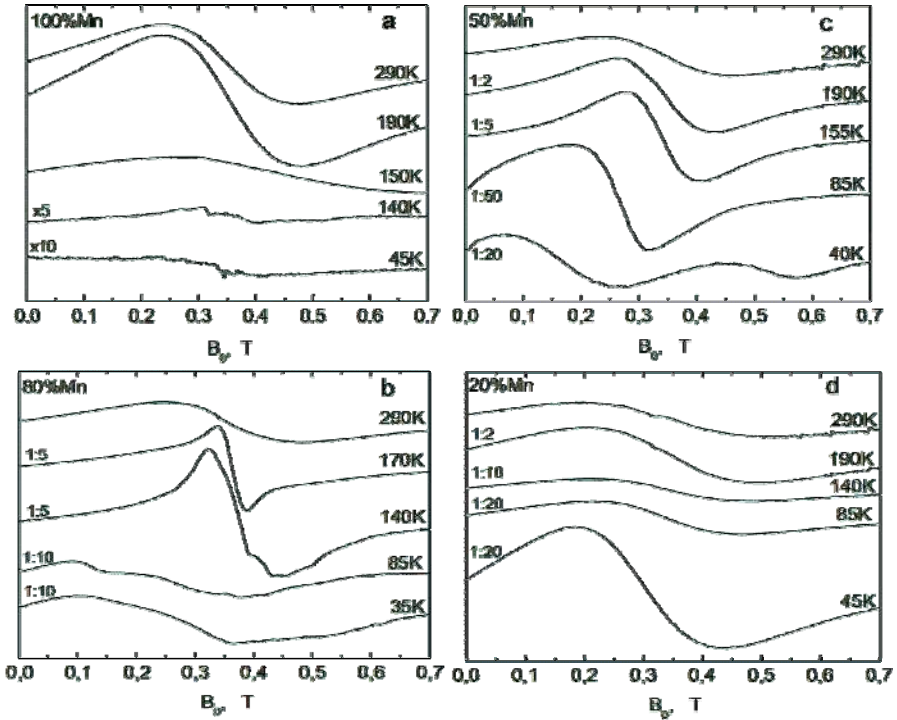


Рис. 2. Спектры ЭПР (производные сигналов поглощения в произвольных единицах) в кристаллах $\text{LaGa}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3$ с концентрациями $x = 1$ (a); 0.8 (b); 0.5 (c) и 0.2 (d) при различных температурах (указаны у кривых)

определяемую отклонением магнитной восприимчивости материала $\chi(T)$ от закона Кюри. Формула (1) справедлива при условии $J \ll (M_2^0)^{1/2}$. Как показано в работах Б.И. Кочлаева, И. Дейзенхофера и др. [7,8] (см. также [19,20]), для концентрированных манганитов основной вклад в M_2^0 дает тонкая структура одночастичного спектра ЭПР иона Mn^{3+} , описываемая спин-гамильтонианом ромбической симметрии, а также (в меньшей степени) анизотропная часть обменного взаимодействия Дзялошинского-Мория. Осевого и ромбического параметры спин-гамильтониана D и E для концентрированного манганита, полученные из сравнения экспериментальных данных с формулой (1), имеют порядок 20 ГГц [7,8,19].

В магнитно-разбавленных кристаллах количественное описание обменного сужения оказывается гораздо сложнее, поскольку вместо единого для всех ионов Mn значения J возникает широкое распределение величин J_{ij} . Как

показали Б.И. Кочелаев с сотрудниками [21], в этом случае нельзя пользоваться простыми процедурами усреднения. Фактически действию обмена подвержены только те парамагнитные центры, которые оказались в составе кластеров из ближайших соседей, а остальные ионы должны демонстрировать обычный дипольно-уширенный спектр. Вопрос о том, сколько ионов Mn должен содержать обменный кластер, чтобы его спектр приблизился к единичной линии лоренцевой формы, остается открытым. Можно предположить, что настоящее обменное сужение имеет место лишь в бесконечном (перколяционном) кластере, возникающем (для простой кубической решетки) при $x_c = 31\%$ [22]. Как видно из рис. 1, 2, в наших образцах переход к обменно-суженной линии наблюдается при $x = 20\%$, что несколько ниже x_c .

Вдали от критических температур в образцах с концентрациями $x \geq 0.2$ наблюдается слабое монотонное уширение линий ЭПР с нагреванием, что качественно согласуется с формулами (1), (2) и данными по концентрированным манганитам [7-9,18,23,24]. С ростом диамагнитного разбавления эта зависимость несколько ослабевает. Резкое уширение, наблюдаемое в LaMnO_3 при подходе к температуре Нееля, соответствует литературным данным [18,7-9] и типично для критического поведения [7,8]. Некоторый рост ширины линии вблизи температур ферромагнитных переходов при $x = 0.8$ и 0.5 также может быть сопоставлен с аналогичным эффектом в концентрированных манганитах [18,24], однако в последнем случае, как показано в работах [25-28], уширение

линии ЭПР вблизи T_c не связано с критическим ускорением релаксации, а носит неоднородный характер.

Обсудим теперь спектр ЭПР в образце с концентрацией $x = 0.1$. Как видно из рис. 1, при высоких температурах здесь наблюдается одиночная линия вблизи $g = 2$, ширина которой значительно меньше, чем при более высоких концентрациях. Заметим, что площадь этой линии соответствует лишь одной десятой от содержания Mn в образце, т.е. концентрации около 1%. При охлаждении ниже 200 К форма линии видоизменяется (рис. 3): происходит ее расщепление на две компоненты, A и B, причем ширина линии B резко возрастает с дальнейшим понижением температуры.

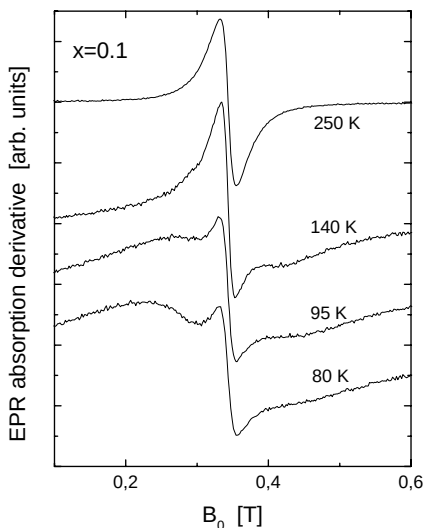


Рис. 3. Спектры ЭПР в $\text{LaGa}_{0.9}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_3$ при различных температурах

Наблюдаемое уширение линии В при охлаждении (другими словами, термоактивированное сужение спектра ЭПР) можно объяснить влиянием неких внутренних движений, приводящих к усреднению тонкой структуры за счет эффективного уменьшения одной или обеих констант спин-гамильтониана, D и E . Если характерные скорости этих движений превышают $J/\hbar$, их усредняющее действие должно проявиться раньше, чем влияние обмена. В таком случае в формуле (1) вместо M_2^0 надо подставить редуцированное движением значение $M_2^* < M_2^0$, которое уменьшается с ростом температуры, что и приводит к сужению линии.

Мы полагаем, что природа обсуждаемого внутреннего движения может быть связана с реориентацией ян-теллеровских орбиталей ионов Mn^{3+} , входящих в состав обменных кластеров. В концентрированном $LaMnO_3$ такая реориентация возможна лишь при достижении критической температуры T_{JT} и носит характер кооперативного фазового перехода, который сопровождается резким сужением линии ЭПР за счет редукции параметров D и E в условиях динамического эффекта Яна-Теллера [7-9,29]. При перенесении этой идеи на магниторазбавленную систему следует учесть, что в ограниченных кластерах перескоки (реориентации) орбиталей через барьер E_a , разделяющей возможные конфигурации, возможны при любой температуре, а вместо фазового перехода здесь ожидается закон Аррениуса с энергией активации E_a .

Соответствующая обработка температурной зависимости ширины линии В при $x = 0.1$ показана на рис. 4. Мы полагали, что вклад в ширину линии дают быстрые флуктуации внутреннего поля со среднеквадратичной амплитудой ω_L и временем корреляции

$$\tau_e = \tau_e^0 \exp\left(\frac{E_a}{kT}\right), \quad (3)$$

а также аддитивный температурно независимый член Δ_0 , учитывающий неоднородное уширение. Пользуясь стандартной теорией сужения спектров магнитного резонанса внутренним движением [30], можно записать

$$\gamma_e \Delta = \left[\left(\Omega_L^2 \tau_e \right)^{-1} + \left(\gamma_e \Delta_\infty \right)^{-1} \right]^{-1} + \gamma_e \Delta_0 \quad (4)$$

где γ_e – электронное гиромагнитное отношение; Ω_L^2 – средний квадрат амплитуды флуктуирующего локального поля на наблюдаемых парамагнитных центрах; Δ_∞ – ширина линии в статическом пределе (этот член устраняет расходямость при $\tau_e \rightarrow \infty$). Подгонка экспериментальных данных формулами (3), (4) при значениях параметров $E_a/k = 550$ К; $\Delta_0 = 27$ мТ; $\Delta_\infty = 160$ мТ; $\tau_e^0 \Omega_L^2 = 5 \cdot 10^5$ с⁻¹ показана на рис. 4 сплошной линией. Хотя значительное число подгоночных параметров, а также ограниченный

диапазон изменения ширины линии не позволяют делать однозначных количественных выводов, на качественном уровне согласие с предложенной моделью представляется вполне разумным.

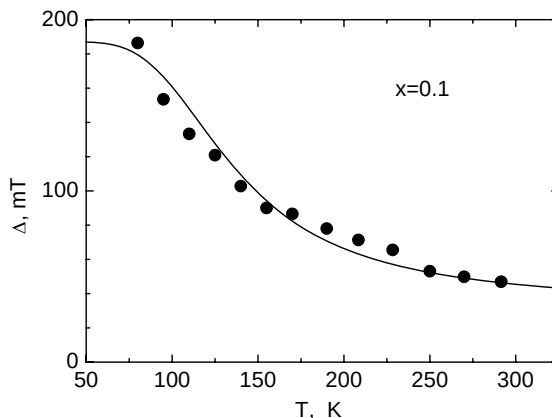


Рис. 4. Температурная зависимость ширины линии "В" в образце $\text{LaGa}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3$ ($x = 0.1$). Точки – эксперимент, кривая – расчет по формулам (3), (4) с параметрами, указанными в тексте.

Б. ЯМР

Другим методом исследования внутренних движений является измерение времени T_{1n} спин-решеточной релаксации ядер основной решетки кристалла. Как известно [30], скорость этой релаксации пропорциональна спектральной плотности $J(\omega_n)$ флуктуаций внутренних полей, вызывающих релаксационные переходы в ядерной спиновой системе, на частоте ЯМР $\omega_n = \gamma_n B_0$. В простейшем случае экспоненциального коррелятора с временем корреляции τ_c она определяется формулой:

$$T_{1n}^{-1} = \omega_L^2 \frac{\tau_c}{1 + \omega_n^2 \tau_c^2} \quad (5)$$

где ω_L^2 – средний квадрат амплитуды флуктуаций, – частота ЯМР. Таким образом, исследуя температурную зависимость T_{1n} , можно получить информацию о времени корреляции внутренних движений.

Основные ЯМР-параметры ядер, на которых проводились измерения, таковы: ^{69}Ga : спин $I = 3/2$; $^{69}\gamma_n/2\pi = 0.102$ Гц/Тл; природная распространенность $^{69}P = 60\%$; электрический квадрупольный момент (в единицах заряда электрона) $^{69}Q = 0.168 \times 10^{-28} \text{ м}^2$; ^{71}Ga : $I = 3/2$; $^{71}\gamma_n/2\pi = 0.13$ Гц/Тл; $^{71}P = 40\%$; $^{71}Q = 0.106 \times 10^{-28} \text{ м}^2$.

Отметим, что изотоп ^{71}Ga имеет больший магнитный момент, а изотоп ^{69}Ga – больший электрический квадрупольный момент. Это обстоятельство оказалось весьма полезным при определении механизмов релаксации из сравнения данных для двух изотопов.

Тот факт, что оба изотопа Ga обладают ядерными спинами $3/2$ и значительными электрическими квадрупольными моментами, несколько усложняет методику и интерпретацию результатов. Приходится иметь дело с четырехуровневыми спиновыми системами, демонстрирующими квадрупольно расщепленные спектры ЯМР: к центральному переходу $\pm 1/2$ добавляются два сателлита, $(3/2, 1/2)$ и $(-1/2, -3/2)$. Хорошо известно, что в таком случае кинетика восстановления сигналов ЯМР после импульсного насыщения состоит, в общем, из трех компонент с характерными скоростями $W_i = R_i W_0$, которые находятся из решения секулярного уравнения для населенностей. Здесь $i = 1, 2, 3$, а через W_0 обозначена самая медленная из скоростей (она соответствует релаксации суммарной продольной намагниченности образца). Значения W_0 и R_i зависят от механизма спин-решеточной релаксации в данном материале. Относительные амплитуды A_i этих компонент определяются, кроме того, условиями насыщения и выбором линии ЯМР, которая регистрируется в эксперименте. В наших опытах насыщался и регистрировался только центральный переход спектра. Можно показать, что в этом случае основной (не менее 90%) вклад в кривую восстановления дает только одна компонента, причем при квадрупольном механизме релаксации она соответствует коэффициенту $R_1 = 1$, а при магнитном дипольном механизме – коэффициенту $R_3 = 6$.

Другое существенное обстоятельство, которое необходимо учитывать при измерениях спин-решеточной релаксации, связано с влиянием ядерной спиновой диффузии [31]. Если флуктуирующие локальные поля, вызывающие ядерную релаксацию, создаются спиновыми магнитными моментами парамагнитных центров (в нашем случае – ионов Mn^{3+}), то величина ω_L^2 в формуле (5) должна сильно (как r_{ij}^{-6}) зависеть от расстояния r_{ij} между данным ядром и ближайшим к нему парамагнитным ионом. Если ядерная спиновая диффузия достаточно эффективна, она усредняет эту зависимость, и наблюдаемая релаксация практически экспоненциальна (точнее, состоит из нескольких экспоненциальных компонент, см. выше). В противном случае кинетика каждой из компонент имеет вид "растянутой экспоненты" [32],

$$S_i(t) = A_i \exp\left(-\sqrt{\frac{t}{T_{1i}}}\right) \quad (6)$$

Здесь $T_{1i}^{-1} = R_i T_{1n}^{-1}$, а T_{1n}^{-1} определяется в нашем случае формулой (5) при значении локального поля [32,33]

$$\omega_L^2 = \frac{6.4\pi^3}{9} n_s^2 S(S+1) \hbar^2 \gamma_e^2 \gamma_n^2 \quad (7)$$

где n_s – концентрация парамагнитных центров.

Измерения показали, что хорошо разрешенная квадрупольная структура спектра ЯМР для обоих изотопов Ga наблюдается лишь в чистом галлате LaGaO_3 и при низких концентрациях Mn, $x=0.005$. Из угловой зависимости этой структуры были определены квадрупольная частота $^{71}\nu_Q = 1.28$ МГц и параметр асимметрии $\eta=0.27$. С повышением концентрации Mn полуширина центрального перехода растет от 1.2 кГц ($x=0; 0.005$) до 25-30 кГц ($x=0.2$). Сателлиты уширяются еще сильнее и при $x > 0.02$ становятся недоступными для наблюдения. Это уширение является неоднородным; как показал анализ, в него дают вклад как искажения градиента электрического поля, обусловленные частичным замещением Ga на Mn, так и статическая компонента дипольного магнитного поля от ионов Mn^{3+} , поляризованных в поле $B_0 = 7$ Тл. Последнее обстоятельство подтверждается температурной зависимостью ширины линии ЯМР.

Однородная часть уширения, оцененная по скорости затухания спинового эха, возрастает от 0.3-0.5 кГц при малых концентрациях Mn до нескольких кГц при $x=0.1-0.2$. В последнем случае она также зависит от температуры и, как показывает анализ, в основном определяется относительно медленными флуктуациями дипольного магнитного поля от парамагнитных центров. Более подробные данные изложены в работе [34].

Основное внимание было уделено механизму ядерной спин-решеточной релаксации. При малых концентрациях парамагнитных центров ($x=0$ и 0.005) кинетика восстановления намагниченности во всем исследованном температурном диапазоне была одноэкспоненциальной, причем отношение $^{71}T_{1n}/^{69}T_{1n}$ составляло 1.85. Хотя эта величина несколько меньше, чем $(^{69}Q/^{71}Q)^2 = 2.5$, преобладание квадрупольного механизма релаксации при малых концентрациях Mn не вызывает сомнений. Температурная зависимость скорости релаксации ($\sim T^{2.4}$) также удовлетворительно согласуется с квадрупольным механизмом для комбинационных спин-фононных процессов.

Наиболее существенные результаты получены на образцах с концентрациями $x \geq 0.02$. В этом случае (за исключением наиболее концентрированного из исследованных образцов, $x=0.2$) кинетика релаксации была близка к "растянутой экспоненте" (6), см. рис. 5. Как видно из рисунка, скорости релаксации на всех концентрированных образцах оказались одинаковыми для обоих изотопов, ^{69}Ga и ^{71}Ga . Это сразу позволяет исключить из рассмотрения квадрупольный механизм релаксации и сосредоточиться на магнитном механизме, обусловленном флуктуациями дипольных локальных полей, создаваемых электронными спинами ионов Mn^{3+} . При этом независимость T_{1n} от

ядерного магнитного момента изотопа однозначно указывает, согласно формулам (5), (7), на реализацию предела "медленных движений",

$$\omega_n \tau_c \gg 1 \quad (8)$$

поскольку только в этом случае величина γ_n^2 , входящая как в множитель ω_L^2 , так и в величину ω_n^2 в знаменателе (5), сокращается и не влияет на результат.

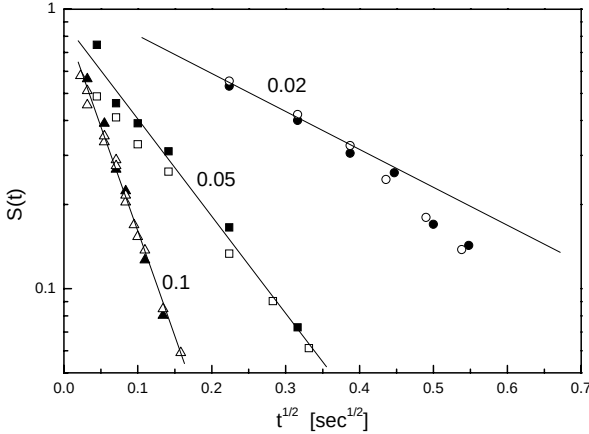


Рис. 5. Кинетика спин-решеточной релаксации ядер ^{69}Ga (черные значки) и ^{71}Ga (светлые значки) при $T = 300\text{ K}$ и различных концентрациях Mn (значения x показаны у кривых). Прямые линии соответствуют "растянутым экспонентам", см. (6).

Для дополнительной проверки при $x = 0.05$ были проведены измерения спин-решеточной релаксации на ядрах ^{139}La ($I = 7/2$; $^{139}\gamma_n/2\pi = 0.605\text{ Гц/Тл}$), обладающих значительно меньшим магнитным моментом по сравнению с обоими изотопами Ga. Полученные данные, обработанные с учетом многоуровневой системы $I = 7/2$, также подтвердили выполнение условия "медленных движений" (8).

Температурные зависимости скоростей ядерной спин-решеточной релаксации галлия при различных концентрациях Mn показаны на рис. 6. Видно, что при $x = 0.02$ имеет место немонотонная зависимость с максимумом около $T = 300\text{ K}$, а в более концентрированных образцах наблюдается приблизительно экспоненциальный рост T_{1n}^{-1} с охлаждением. Подобные зависимости неоднократно наблюдались в ядерных спиновых системах с термоактивированным внутренним движением (см., напр., [30]), однако замедление релаксации при повышении температуры обычно ассоциировалось с пределом "быстрых движений",

$$\omega_n \tau_c \ll 1, \quad (9)$$

а максимум на кривой $T_{1n}^{-1}(T)$ – с условием $\omega_n \tau_c = 1$. И то, и другое не согласуется со сделанным выше выводом о справедливости неравенства (8).

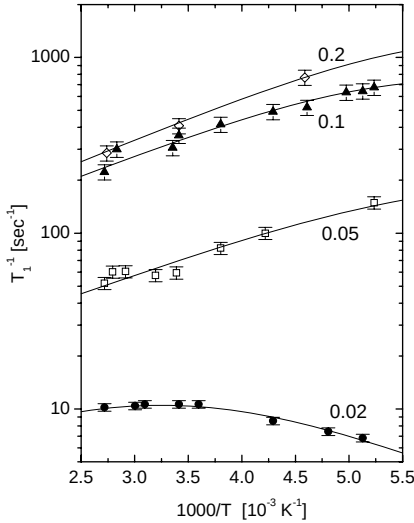


Рис. 6. Температурные зависимости скорости ядерной спин-решеточной релаксации галлия при концентрациях марганца $x = 0.02-0.2$ (указаны у кривых). Сплошные кривые – расчет по формулам (3), (10) с параметрами, приведенными в Табл. 1.

Предположим теперь, что в качестве времени корреляции τ_c в формулах (5) и (8) выступает время электронной спин-решеточной релаксации T_{1e} ионов Mn^{3+} . Примем, далее, что причиной электронной релаксации является некое внутреннее движение с новым, значительно более коротким временем корреляции τ_e , которое подчиняется закону Аррениуса с энергией активации E_a , см. формулу (3), использованную при обсуждении данных ЭПР. В этом случае величина T_{1e}^{-1} определяется формулой, аналогичной (5), но с заменой τ_c на τ_e , а частоты ЯМР, $\omega_n \sim 5 \times 10^8 \text{ c}^{-1}$, – на частоту ЭПР, $\omega_e \sim 10^{12} \text{ c}^{-1}$. Тогда, учитывая условие (8) и соотношение (5), имеем:

$$T_{1n}^{-1} = \left(\frac{\omega_L^2}{\omega_n^2} \right) \frac{\Omega_L^2 \tau_e}{1 + (\omega_e \tau_e)^2} \quad (10)$$

где Ω_L^2 играет роль среднего квадрата амплитуды флуктуирующего локального поля, индуцирующего релаксацию электронных спинов.

Результаты подгонки экспериментальных зависимостей $T_{1n}^{-1}(T)$ формулой (10) показаны на рис. 6 сплошными линиями. При подгонке учи-

тывалось, что наблюдаемая на центральном переходе скорость релаксации, в соответствии со сказанным выше, равна $6 T_{1n}^{-1}$. Набор параметров, обеспечивших наилучшее согласие с экспериментом, приведен в Табл. I.

Таблица I. *Параметры подгонки температурных зависимостей T_{1n} (рис. 6) формулами (3), (10)*

x	E_a/k , К	ω_L/γ_n , Э	τ_{e0} , 10^{-14} с	Ω_L , 10^{10} с
0.02	550	9	13.5	2.0
0.05	500	22	3.0	2.5
0.1	550	46	3.0	2.5
0.2	580	59	2.0	2.5

Обсудим вкратце данные Табл. I. Подчеркнем прежде всего близость значений E_a , полученных для различных концентраций Mn, а также совпадение этой величины с оценкой энергии активации по данным ЭПР (раздел 3А). Далее, отметим, что использованные при подгонке значения амплитуды флуктуаций Ω_L по порядку величины согласуются с параметрами D и E спинового гамильтониана ионов Mn^{3+} [7,8,19,29]. Наконец, следующая из Табл. I квадратичная концентрационная зависимость ω_L согласуется с формулой (7). При этом значения n_s , полученные из сопоставления (7) с данными таблицы, оказываются в 5-10 раз ниже, чем номинальная концентрация Mn в образцах. Этот вывод согласуется с данными ЭПР для $x=0.1$, где наблюдалось термоактивированное сужение линии. Таким образом, в термоактивированном движении, определяющем скорость ядерной релаксации Ga, участвуют далеко не все присутствующие в образцах ионы Mn^{3+} . Это представляется вполне разумным, если принять высказанное в разделе 3А предположение о том, что внутреннее движение обусловлено термоактивированными реориентациями ян-теллеровских конфигураций в кластерах, состоящих из нескольких ионов Mn^{3+} . Естественно, что в такие кластеры попадает лишь небольшая часть всех парамагнитных ионов, однако скорость реориентаций в них оказывается наиболее эффективной для спиновой релаксации. Отметим, что, кроме кластеров, источником потенциальных барьеров для ян-теллеровских реориентаций могут служить различные структурные дефекты, играющие роль центров пиннинга.

4. Заключение

Таким образом, проведенное в данной работе исследование спектров ЭПР в серии магниторазбавленных образцов манганитов-галлатов лантана, как и выполненные на тех же материалах измерения ядерной спин-решеточной ре-

лаксации галлия, дает основания говорить о существовании в этих материалах внутреннего термоактивированного движения с энергией активации порядка 50 мэВ. Полученная оценка энергии активации по порядку величины согласуется с минимальной высотой потенциального барьера, характерной для реориентаций тетрагональных ян-теллеровских конфигураций в гидратных комплексах меди [35,36]. Отметим, что этот барьер значительно ниже номинальной энергии ян-теллеровского расщепления состояния e_g . Он возникает за счет квадратичных вибронных взаимодействий с учетом ангармоничности и соответствует "обходной" траектории вокруг пика потенциальной энергии [36,37].

Термоактивированные реориентации ян-теллеровских искажений можно рассматривать как переходной этап от жесткого статического орбитального упорядочения e_g -орбиталей к динамическому беспорядку. Ферромагнитный знак обменного взаимодействия, свойственный данному явлению, согласуется с теоретической моделью вибронно-зависящего суперобмена в условиях коррелированных реориентаций орбиталей [10,11]. Полная теория магнитного резонанса и релаксации в подобных объектах пока отсутствует. Можно лишь подчеркнуть, что многообразие возможных кластерных образований в разбавленной системе делает маловероятным существование какого-либо одного четко определенного значения E_a , так что полученные оценки относятся скорее к некому усредненному параметру. Очевидно, что для исчерпывающего количественного анализа предложенной модели необходимы дальнейшие исследования, включающие как различные экспериментальные методы, так и последовательное теоретическое рассмотрение спиновых эффектов в условиях термоактивированного ян-теллеровского движения.

Авторы благодарят Г.Б. Лутца (G.B. Loutts, Norfolk State University, USA) за предоставление образцов для исследования, В.С. Вихнина и Ф.С. Джепарова – за полезные обсуждения. Работа поддержана грантом РФФИ 02-02-16219, Программой фундаментальных исследований РАН "Спин-зависимые эффекты в твердых телах и спинтроника" и грантом NSF CREST Project HRD-9805059.

Литература

1. J.M.D. Coey, M. Viret, S. Von Molnar, Adv. Phys. **48**, 167 (1999).
2. E.L. Nagaev, Phys. Rep. **346**, 387 (2001).
3. E. Dagotto, J. Hotta, and A. Moreo, Phys. Rep. **344**, 1 (2001).
4. М.Ю. Каган, К.И. Кугель, УФН **171**, 577 (2001).
5. Q. Huang, A. Santoro, J.W. Lynn, et al., Phys. Rev. B **55**, 14987 (1997).
6. T. Chatterji, B. Ouladdiaf, P. Mandal, et al., Phys. Rev. B **66**, 054403 (2002).
7. B.I. Kochelaev, E. Shilova, J. Deisenhofer, et al., Mod. Phys. Lett. B **17**, 459 (2003).
8. J. Deisenhofer, B.I. Kochelaev, E. Shilova, et al., Phys. Rev. B **68**, 214427 (2003).

9. M.T. Causa, G. Alejandro, R. Zysler, et al., J. Magn. Magnet. Mat. **136-137**, 506 (1999).
10. J.B. Goodenough, A. Wold, R.J. Arnott, N. Menyuk, Phys. Rev. **124**, 373 (1961).
11. J.-S. Zhou, H.Q. Yin, and J.B. Goodenough, Phys. Rev. B **63**, 184423 (2001).
12. A.I. Coldea, S.J. Blundell, I.M. Marshall, et al., Phys. Rev. B **65**, 054402 (2001).
13. J. Blasco, J. Garcia, J. Campo, et al., Phys. Rev B **66**, 174431 (2002).
14. S. Hébert, C. Martin, A. Maignan, et al., Phys. Rev. B **65**, 104420 (2002).
15. J.-S. Zhou, J.B. Goodenough, Phys. Rev. B **68**, 144406 (2003).
16. N. Noginova, G.B. Loutts, E.S. Gillman, et al., Phys. Rev. B **63**, 174414 (2001).
17. S.M. Yusuf, M. Sahana, K. Dörr, et al., Phys. Rev. B **66**, 064414 (2002).
18. D.L. Huber, G. Alejandro, A. Caneiro, et al., Phys. Rev. B **60**, 12155 (1999).
19. J. Deisenhofer, M.V. Eremin, D.V. Zakharov, et al., Phys. Rev. B **65**, 104440 (2002).
20. P.W. Anderson, P.R. Weiss, Rev. Mod. Phys. **25**, 269 (1953).
21. Е.С. Гринберг, Б.И. Кочелаев, Г.Г. Халиуллин, ФТТ **23**, 397 (1981).
22. N. Jan, D. Stauffer, Intern. J. Mod. Phys. C **9**, 341 (1998).
23. M.T. Causa, M. Tovar, A. Caneiro, et al., Phys. Rev. B **58**, 3233 (1998).
24. V.A. Ivanshin, J. Deisenhofer, H.-A. Krug von Nidda, et al., Phys. Rev. B **61**, 6213 (2000).
25. F. Rivadulla, M.A. Lopez-Quintela, L.E. Hueso, et al., Phys. Rev. B **60**, 11922-11925 (1999).
26. V.A. Atsarkin, V.V. Demidov, G.A. Vasneva, K. Conder, Phys. Rev. B **63**, 092405 (2001).
27. V.A. Atsarkin, V.V. Demidov, F. Simon, et al., J. Magn. Magn. Mat. **258-259**, 256 (2003).
28. V.A. Atsarkin, V.V. Demidov, G.A. Vasneva, D.G. Gotovtsev, Appl. Magn. Reson. **21**, 147 (2001).
29. G. Alejandro, M.C.G. Passeggi, D. Vega, et al., Phys. Rev. B **68**, 214429 (2003).
30. Ч. Сликтер, *Основы теории магнитного резонанса* (перевод с англ.), Мир, М. (1981), гл. 5.
31. Г.П. Хуцишвили, УФН **87**, 211 (1965); **96**, 441 (1968).
32. И.В. Александров, *Теория магнитной релаксации*, Наука, М., 1975), гл. 7.
33. Ф.С. Джепаров, Ж.-Ф. Жакино, С.В. Степанов, Ядерная физика **65**, 2113 (2002).
34. N. Noginova, E. Arthur, T. Weaver, et al., Phys. Rev. B **69**, 024406 (2004).
35. U. Orlik, M.H.L. Pryce, Proc. Roy. Soc. A **238**, 425 (1957).
36. А. Абрагам, Б. Блини, *Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов* (перевод с англ.), Мир, Москва (1973), т.2, с.256.
37. В.С. Вихнин, частное сообщение.

**EFFECT OF DIAMAGNETIC DILUTION
ON SPIN DYNAMICS IN MANGANITES**

V. A. Atsarkin¹, V. V. Demidov¹, D. G. Gotovtsev¹, N. E. Noginova^{1,2}

¹ *Institute of Radio Engineering and Electronics RAS, 125009 Moscow, Russia*

² *Norfolk State University, Norfolk, VA 23504, USA*

In the magnetically diluted $\text{LaMn}_x\text{Ga}_{1-x}\text{O}_3$ single crystals, the EPR spectra of the Mn ions (at $0.02 \leq x \leq 1$), as well as NMR and nuclear spin-lattice relaxation of ^{69}Ga and ^{71}Ga nuclei have been investigated. The analysis of the EPR spectra enabled one to follow the exchange narrowing effect to the point of appearance of a single Lorentzian line at $x \geq 0.2$. The transition from the antiferromagnetic to ferromagnetic type of spin ordering is confirmed under condition of the diamagnetic dilution with Ga, starting from $x = 0.8$. At $x = 0.1$, unusual broadening and splitting of the EPR spectrum are found upon cooling; this can be assigned to the effect of thermally activated internal motion with characteristic energy E_a of about 50 meV. The study of nuclear spin-lattice relaxation was performed in the temperature range of 190-390 K. The obtained data support the existence of the internal motion with the same value of E_a . This motion can be attributed to thermally activated re-orientations of the e_g electron orbitals of the Mn^{3+} ions subjected to the Jahn-Teller effect.

АНАЛИЗ ИЗОТОПИЧЕСКОГО ЭФФЕКТА В СИЛЬНОКОРРЕЛИРОВАННЫХ СВЕРХПРОВОДНИКАХ В РАМКАХ ДВУХОРБИТАЛЬНОЙ МОДЕЛИ АНДЕРСОНА-ХАББАРДА

А.П. Ахтанин, А.А. Косов

Марийский государственный университет, 424001 Йошкар-Ола

В рамках двухорбитальной модели Хаббарда получены формулы для квазичастичного спектра в энергетических зонах, гибридованных андерсоновским взаимодействием. Переход к операторам Хаббарда, и диагонализация одноузельной части оператора Гамильтона позволили нам с помощью техники функций Грина учесть межузельное взаимодействие и изучить сверхпроводящие свойства модели. Предполагая, что эффективность гибридизации электронов связана с амплитудой локальных колебаний ионов, мы определили зависимость температуры сверхпроводящего перехода (T_c) от массы ионов (M) и величину изотопического эффекта $\alpha = (M / T_c) (dT_c / dM)$. Полученные зависимости параметра α от концентрации носителей тока и энергетических параметров электронных взаимодействий позволяют сделать вывод о том, что в некоторой области значений этих параметров величина изотопического эффекта может быть существенной.

I. Введение

Теоретическое изучение явления сверхпроводимости в металлооксидных соединениях чрезвычайно сложно по многим причинам, в том числе из-за сложной природы внутриатомных электрон-электронных корреляций [1,2,3]. Вместе с тем интерес к проблеме возникновения сверхпроводимости в таких соединениях, как $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_y$ и других, не ослабевает. На наш взгляд, одна из возможных причин, раскрывающих природу механизма сверхпроводимости, по-видимому, тесно связана с изучением изотопического эффекта в таких соединениях. В настоящей работе мы, исходя из предположения о том, что эффект гибридизации p - и d - электронных состояний зависит от амплитуды колебаний ионов меди в позициях Cu(II) , определили область значений параметра изотопического эффекта $\alpha = (M / T_c) (dT_c / dM)$.

II. Формулировка модели

Чтобы описать свойства сильно коррелированной системы электронов запишем следующий гамильтониан [4,5]:

$$H = H_0 + H_{\text{int}} = \sum H_{0i} + \sum t_{ij} C_{is}^+ C_{js} \quad (1)$$

$$\begin{aligned}
 H_{0i} = & -\mu(n_{ia\uparrow} + n_{ia\downarrow} + n_{ic\uparrow} + n_{ic\downarrow}) + E(n_{ia\uparrow} + n_{ia\downarrow}) - \\
 & -H(n_{ia\uparrow} - n_{ia\downarrow} + n_{ic\uparrow} - n_{ic\downarrow}) + I \cdot n_{ia\uparrow} n_{ia\downarrow} + U(n_{ia\uparrow} + n_{ia\downarrow})(n_{ic\uparrow} + n_{ic\downarrow}) + \\
 & + U_I n_{ic\uparrow} n_{ic\downarrow} + \lambda Q(a_{i\uparrow}^+ C_{i\uparrow} + a_{i\downarrow}^+ C_{i\downarrow}) + \text{h.c.}
 \end{aligned}$$

где C_{is}^+ , C_{is} и a_{is}^+ , a_{is} – полевые операторы, соответствующие p - и d -электронам на узле i с проекцией спина s ; $n_{ias} = a_{is}^+ a_{is}$ и $n_{ics} = C_{is}^+ C_{is}$ – операторы числа электронов; S_i и s_i – операторы спина p - и d -электронов; μ – химический потенциал; H – приложенное магнитное поле; E – одночастичная энергия d -электронов; I , U , и U_I – энергетические параметры, определяющие внутриатомные корреляции; I – хаббардовское взаимодействие локализованных электронов; U – межорбитальное кулоновское взаимодействие p - и d -электронов; U_I – энергия отталкивания p -электронов на одном узле; λQ – оператор, ответственный за гибридизацию p - и d -электронных состояний.

Здесь мы предполагаем, что этот оператор пропорционален оператору смещения Q иона из положения равновесия. H_{int} описывает межузельное туннелирование p -электронов с транспортным интегралом t_{ij} .

Диагонализация одноячеечного гамильтониана H_{0i} , усреднение по колебательным состояниям иона (мы ограничились здесь моделью Эйнштейна при описании локальных колебаний иона) и переход к операторам Хаббарда X_p^q приводит к следующим результатам для волновых функций и энергетического спектра:

$$\begin{aligned}
 E_0 &= 0, \psi_0 |0, 0\rangle \text{ – вакуум;} \\
 E_{A,B} &= -\mu + (E - 2H) / 2 \pm ((E/2)^2 + (\lambda^2 \langle Q^2 \rangle))^{1/2} \\
 \psi_{A,B} &= \cos(\alpha) |+, 0\rangle \pm \sin(\alpha) |0, +\rangle; \\
 E_{C,D} &= -\mu + (E + 2H) / 2 \pm ((E/2)^2 + (\lambda^2 \langle Q^2 \rangle))^{1/2}; \\
 \psi_{C,D} &= \cos(\alpha) |-, 0\rangle \pm \sin(\alpha) |0, -\rangle; \\
 |s, 0\rangle &= a_{is}^+ |0, 0\rangle; |0, +\rangle = C_{is}^+ |0, 0\rangle. \\
 \cos(\alpha) &= Z / (Z^2 + (\lambda^2 \langle Q^2 \rangle))^{1/2}; \quad \sin(\alpha) = \lambda \langle |Q| \rangle / (Z^2 + (\lambda^2 \langle Q^2 \rangle))^{1/2} \\
 Z &= \begin{cases} ((E/2)^2 + (\lambda^2 \langle Q^2 \rangle))^{1/2} + E/2, & \text{if } E > 0 \\ ((E/2)^2 + (\lambda^2 \langle Q^2 \rangle))^{1/2} - E/2, & \text{if } E < 0 \end{cases} \\
 E_{F,G} &= U - 2\mu + E \pm 2H; \\
 \psi_F &= |+, +\rangle; \psi_G = |-, -\rangle;
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 E_T &= U - 2\mu + E ; \\
 \psi_s &= 2^{-1/2} \{ |+, -\rangle - |-, +\rangle \} ; \\
 |+, +\rangle &= a_{i\uparrow}^+ C_{i\uparrow}^+ |0, 0\rangle ; \quad |-, -\rangle = a_{i\downarrow}^+ C_{i\downarrow}^+ |0, 0\rangle ; \\
 |+, -\rangle &= a_{i\uparrow}^+ C_{i\downarrow}^+ |0, 0\rangle .
 \end{aligned}$$

Энергия двухчастичных состояний E_K , E_L , and E_M может быть получена из решения кубического уравнения:

$$\begin{aligned}
 X^3 + AX^2 + BX + C &= 0 ; \\
 A &= -(I + U + U_1 + 3E) ; \\
 B &= (I + 2E)(E + U) + U_1(3E + U + I) - 4(\lambda^2 \langle Q^2 \rangle) ; \\
 C &= 2(\lambda^2 \langle Q^2 \rangle)(I + 2E + U_1) - U_1(E + U)(2E + I) .
 \end{aligned} \tag{2}$$

Корни $X = \{X_m\}$ уравнения (2) определяют

$$E_{K,L,M} : X_m = 2\mu + E_{m, m=K,L,M} .$$

После точной диагонализации одно-узельной части Гамильтониана (1), его можно записать через диагональные операторы Хаббарда X_p^q в следующем виде [6]:

$$H_{0i} = \sum_p E_p X_p^p, \quad p = 0, A, B, \dots, K, L, M ; \tag{3}$$

Оператор H_{int} , ответственный за перенос электронов между узлами, может быть представлен через квадратичную форму недиагональных хаббардовских операторов:

$$H_{\text{int}} = \sum_{ij} t_{ij} g_{is}^*(X) g_{is}(X) . \tag{4}$$

Операторы C_{is}^+ и C_{is} в H_{int} выражаются через операторы Хаббарда следующим образом:

$$\begin{aligned}
 C_{i\uparrow}^+ &= \cos(\alpha) X_A^0 + R_C^K X_K^{DC} = g_{i\uparrow}^*(X) ; \\
 C_{i\downarrow}^+ &= \cos(\alpha) X_C^0 + R_A^K X_K^{BA} = g_{i\downarrow}^*(X) ; \\
 R_C^K &= R_A^K = (C_1 A_3 - A_1 C_3) \cos(\alpha) / \sqrt{2} + (C_1 A_2 - C_2 A_1) \sin(\alpha) ; \\
 A_1 &= (1 + A_{21}^2 + A_{13}^2)^{-1/2} ; \quad A_2 = A_{21} A_1 ; \quad A_3 = A_{31} A_1 ; \\
 A_{21} &= (E_L - 2E - I)^2 / 2(\lambda^2 \langle Q^2 \rangle) ; \quad A_{31} = (E_L - 2E - I)^2 / (E_L - U_1)^2 ; \\
 B_2 &= (1 + B_{12}^2 + B_{32}^2)^{-1/2} ; \quad B_1 = B_{12} B_2 ; \quad B_3 = B_{32} B_2 ;
 \end{aligned}$$

$$C_3 = (1 + C_{13}^2 + C_{23}^2)^{-1/2}; \quad C_1 = C_{13}C_3; \quad C_2 = C_{23}C_3;$$

$$C_{13} = \left[(E_K - E - U)(E_K - U_1) - 2(\lambda^2 \langle Q^2 \rangle) \right] / \left[2(\lambda^2 \langle Q^2 \rangle) \right];$$

$$C_{23} = (E_K - U_1) / \sqrt{2}(\lambda^2 \langle Q^2 \rangle).$$

В дальнейшем мы ограничимся нижней частью спектра и будем рассматривать только одночастичные состояния Ψ_A и Ψ_C , двухчастичное состояние Ψ_K и вакуумное состояние Ψ_0 .

Исходя из этих условий, и проводя аналогичные работам [6,7] расчеты, мы получили следующее выражение для температуры сверхпроводящего перехода:

$$T_c / 2W = 0,57 \left[-\xi_{10}(-W) \xi_{10}(W / W^2) \right]^{1/2} \exp[-1 / A(n, t_0)]; \quad (5)$$

$$\xi_{10}(-W) = -2(R_c^K)^2 (n / 2);$$

$$\xi_{10}(W) = -\mu + (B_+ W - P_+ - \Delta) / 2;$$

$$A(n, t_0) = \Gamma(n, t_0) / \Lambda(n, t_0);$$

$$\Gamma(n, t_0) = \left\{ t_0 \cos^2(\alpha) (1 - n / 2) (E_C - E_K) (E_C + B_- t_0) + \right. \\ \left. + (R_c^K)^2 (n / 2) E_A (E_A - E_K + B_- t_0) \right\};$$

$$\Lambda(n, t_0) = W [B_+ (2\mu + \Delta) + B_- \Delta_1] (2\mu + \Delta - B_+ t_0);$$

$$\Delta = -(E_K + 2\mu); \Delta_1 = \Delta + E - \text{sign}(E) \left[E^2 + 4(\lambda^2 \langle Q^2 \rangle) \right]^{1/2};$$

$$\mu = -\Delta / 2 - WB_+ / 2 + 2(n / 2) W (R_c^K)^2 - P_- / 2;$$

$$P_{\pm} = \left\{ B_+^2 W^2 \pm 2\Delta_1 B_- W + \Delta_1 B_- W + \Delta_1^2 \right\}^{1/2};$$

$$B_{\pm} = \cos^2 \alpha (1 - n / 2) \pm (R_c^K)^2 (n / 2).$$

Параметры $A(n, t_0)$, t_0 , $\xi_{10}(W)$ должны удовлетворять условиям:

$$A(n, t_0) > 0; -W < t_0 < W; \xi_{10}(W) \geq 0.$$

Здесь W – полуширина нижней дисперсной хаббардовской подзоны с концентрацией носителей тока n .

III. Изотопический сдвиг

В модели Эйнштейна зависимость между средне-квадратичным смещением иона ($\langle Q^2 \rangle$) и его массой M носит следующий характер:

$$\langle\langle Q^2 \rangle\rangle \sim M^{-1/2}. \quad (6)$$

Учитывая эту зависимость, с помощью формулы для T_c (5) легко получить выражение для параметра изотопического эффекта α :

$$\alpha = (M / T_c)(dT_c / dM) = -(\langle\langle Q^2 \rangle\rangle / 2)(d(\ln T_c) / d(\langle\langle Q^2 \rangle\rangle)) \quad (7)$$

На рисунках 1-3 приведены зависимости параметра α от энергетических параметров, характеризующих внутриатомные корреляции, полученные при разных концентрациях носителей тока. Характерным для всех графиков является то, что модуль параметра изотопического сдвига, как правило, значительно меньше значения $|\alpha| = 1/2$, соответствующего фононной модели сверхпроводимости БКШ. Вместе с тем, мы можем подобрать параметры модели так, что значения $|\alpha|$ могут иметь величину сравнимую и даже превышающую $1/2$.

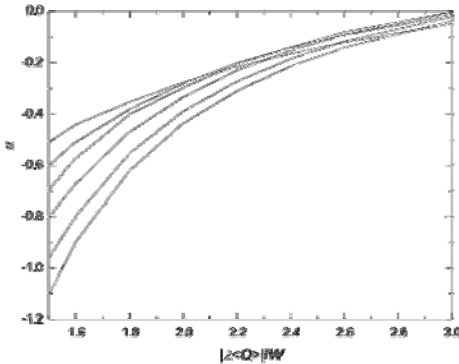


Рис.1. Зависимость параметра изотопического сдвига α от матричного элемента $|\lambda < Q >| / W$ при следующих значениях энергетических параметров: $E/W = -1.0$, $U/W = 2.0$, $U_I/W = 1.0$, $I/W = 3.0$. Каждая кривая отвечает своему значению концентрации носителей ($n = 0.67, 0.7, 0.75, 0.8, 0.85, 0.9$). Чем выше проходит кривая, тем больше это значение

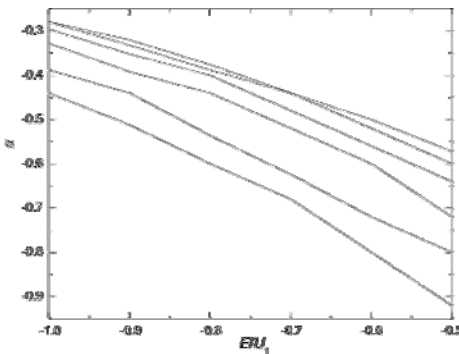


Рис.2. Зависимость параметра изотопического сдвига α от E при различных концентрациях носителей при следующих значениях энергетических параметров: $|\lambda < Q >| / W = 2.0$; $U / W = 2.0$; $U_I / W = 1.0$; $I / W = 3.0$. Набор кривых отвечает тем же значениям концентрации носителей, что и на рис. 1

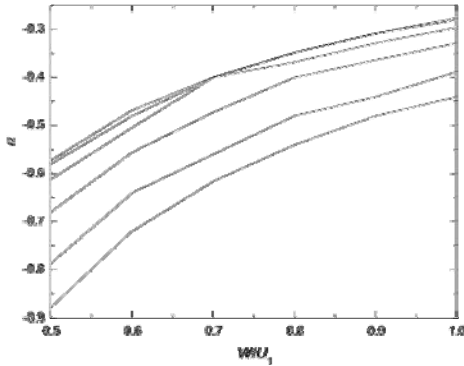


Рис.3. Зависимость параметра изотопического сдвига α от полуширины хаббардовской подзоны W при различных концентрациях носителей при следующих значениях энергетических параметров: $E/W = -1.0$; $E/U_1 = -1.0$; $U/U_1 = 2.0$; $I/U_1 = 3.0$. Набор кривых отвечает тем же значениям концентрации носителей, что и на рис.1-2

Литература

1. Izumov Yu.A., Katsnel'son M.I., Skryabin Yu.N. Magnetism of Collectivized Electrons [in Russian]. – Moscow: Nauka, 1994.
2. Schilling J.S., Klotz S. Physical Properties of High Temperature Superconductors / ed. by D.M. Ginsberg // World Scientific. – Singapore, 1992. – V.III.
3. Takahashi H., Mori N. Studies of High Temperature Superconductors / ed. by Anant Narlikar // Nova Science Publishers. – INC, 1996. – V.16.
4. Kosov A.A. Analysis of the superconducting transition under pressure in the Anderson-Hubbard two-orbital model // Fiz. Nizk. Temp. – 1998. – V.24, №3.
5. Косов А.А., Шилов В.Е. Исследование сверхпроводящего перехода в рамках периодической двухорбитальной модели Андерсона-Хаббарда // ФНТ. – 1996. – Т.22, №9. – С. 1032. [Kosov A.A., Shilov V.E. // Low Temp. Phys. – 1996. – V.22, №9. – P. 787].
6. Kosov A.A., Boughton R.I. Analysis of the effect of oxygen doping and pressure on superconducting temperature in metal oxides // JETP. – 1999. – V. 115, вып.1. – P. 80–88.
7. Kosov A.A., Boughton R.I. Analysis of the effect of oxygen doping and pressure on superconducting phase transition in $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ // 32-nd Workshop on Low Temperature Physics, Russia, Kazan, 3-6 October. Казань, 2000. – P. 169–170.

**THE ISOTOPIC EFFECT
IN HIGHLY CORRELATED SUPERCONDUCTORS
IN THE ANDERSON-HUBBARD TWO-ORBITAL MODEL**

A.P. Achtanin, A.A. Kosov

Mari State University, Yoshkar-Ola, Mari El, 424001 Russia

The two-orbital Hubbard model is used to obtain formula for the fermion excitation spectrum in the energy bands hybridized by Anderson's interaction. A transition to the Hubbard operators diagonalizes the one-site part of the Hamiltonian and allows us to use Green's function technique to take into account the interstitial hopping term, while studying the superconducting properties of the model. By proposing the dependence of the matrix element responsible for hybridization of p - and d - electronic states on the amplitude of local vibrations of ions, we determined a value of isotopic effect $\alpha = (M/T_c)(dT_c/dM)$ (M – mass of ions). The dependence of α upon carrier density and energy parameters determining the intra-atomic correlation is analyzed. It was concluded, that at some values of parameters the isotopic effect in T_c can be large enough and the model under consideration can be used for the description of the isotopic shift in T_c for a number of superconductors.

ЭЛЕМЕНТАРНЫЕ ВОЗБУЖДЕНИЯ В КЛАССИЧЕСКОМ ДВУМЕРНОМ ФЕРРОМАГНЕТИКЕ

С.И. Белов

Казанский государственный университет, Казань

Получен спектр элементарных возбуждений над неоднородным скирмионным состоянием классического двумерного ферромагнетика.

Неоднородные устойчивые конфигурации, получившие впоследствии название скирмионов или топологических возбуждений, впервые были рассмотрены в работах Скирме [1-3] в связи с задачей о механизме нуклон-нуклонного взаимодействия. В 1975 году Белавин и Поляков установили существование таких же состояний в двумерном классическом ферромагнетике, не рассматривая их вклад в магнитные и кинетические свойства системы. В данной работе определяется спектр элементарных возбуждений над скирмионным состоянием (этому эквивалентна задача об устойчивости таких состояний).

Рассмотрим квадратную решетку, в каждом узле которой расположен трехмерный классический спин, состояние которого можно задать двумя сферическими углами θ и φ .

$$\mathbf{S} = S\mathbf{n}, \quad \mathbf{n} = (\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta). \quad (1)$$

Гамильтониан такой системы в непрерывном пределе имеет вид

$$H = \frac{1}{2} JS^2 \int d^2x \left[(\nabla \theta)^2 + \sin^2 \theta (\nabla \varphi)^2 \right]. \quad (2)$$

Здесь θ и φ предполагаются гладкими функциями координат x, y , интегрирование проводится по бесконечной плоскости.

Минимизация гамильтониана по φ и θ приводит к уравнениям, описывающим неоднородную спиновую конфигурацию:

$$\begin{aligned} \Delta \theta &= \sin \theta \cos \theta (\nabla \varphi)^2 \\ \nabla (\sin^2 \theta \nabla \varphi) &= 0 \end{aligned} \quad (3)$$

Решения системы (3), называемые топологическими возбуждениями, были получены Белавиным и Поляковым [4] в следующем виде:

$$W(z) = \tan(\theta/2) \exp(i\varphi) = \frac{P_{Q_1}(z)}{R_{Q_2}(z)}, \quad (4)$$

где $z = x + iy$, $P_{Q_1}(z), R_{Q_2}(z)$ – полиномы степени Q_1, Q_2 , соответственно.

Решения (4) могут быть представлены как непрерывное отображение бесконечной плоскости на сферу единичного радиуса с топологическим зарядом Q , равным наибольшему из значений Q_1, Q_2 . Простейшие конфигурации, соответствующие $Q = +1, -1$, впервые полученные Скирме [1], были названы скирмион и антискирмион.

Уравнения (3) представляют собой, вообще говоря, условие экстремальности функционала энергии (2). Для того, чтобы соответствующие состояния были устойчивыми, то есть соответствовали минимуму функционала, необходима положительная определенность второй вариации H вблизи экстремальных решений.

Спиновые конфигурации вблизи экстремальных состояний можно записать следующим образом:

$$\begin{aligned}\theta &= \theta_0 + \theta_1 \\ \varphi &= \varphi_0 + \varphi_1\end{aligned}\quad (5)$$

Здесь θ_0, φ_0 – решения, удовлетворяющие (4), θ_1, φ_1 – малые отклонения от этих состояний.

С точностью до квадратичных по θ_1, φ_1 членов гамильтониан (2) принимает вид:

$$H = \varepsilon_0 Q + \frac{1}{2} JS^2 \int d^2x [a^* \hat{F} a], \quad (6)$$

где $\varepsilon_0 = 4\pi JS^2$, $\hat{F} = -\nabla^2 + 2i \cos \theta_0 \nabla \varphi_0 \nabla + (\nabla \varphi_0)^2 \cos 2\theta_0$, $a = \theta_1 - i\varphi_1 \sin \theta_0$.

Как видно, условие положительной определенности второй вариации функционала энергии эквивалентно положительности спектра собственных значений оператора $\hat{F}$, или энергии элементарных возбуждений над скирмионным состоянием. Для исследования второго слагаемого в выражении (6) удобно перейти от интегрирования по бесконечной плоскости к Q -кратному интегрированию по единичной сфере. Замечая, что

$$\begin{aligned}d^2x &= \left| \frac{\partial(x, y)}{\partial(\theta_0, \varphi_0)} \right| d\theta_0 d\varphi_0 = \frac{d\Omega}{(\nabla \varphi_0)^2 \sin \theta_0}, \\ d\Omega &= \sin \theta_0 d\theta_0 d\varphi_0\end{aligned}\quad (7)$$

перепишем (6) в следующей форме:

$$\begin{aligned}H &= \varepsilon_0 Q + \frac{1}{2} JS^2 \int_{(Q)} d\Omega [a^* \hat{G} a], \\ \hat{G} &= -\frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta} \right) - \frac{1}{\sin^2 \theta} \left(\frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} + 2i \cos \theta \frac{\partial}{\partial \varphi} + \cos 2\theta \right).\end{aligned}\quad (8)$$

Здесь и далее опускаем значок 0 в переменных θ_0, φ_0 .

Спектр собственных значений $\hat{G}$ легко получить, введя, по определению, операторы $\hat{J}_+, \hat{J}_-, \hat{J}_z$:

$$\begin{aligned}\hat{J}_+ &= \exp(i\varphi) \left(\frac{\partial}{\partial \theta} + i \cot \theta \frac{\partial}{\partial \varphi} + \frac{1}{\sin \theta} \right) \\ \hat{J}_- &= \exp(-i\varphi) \left(-\frac{\partial}{\partial \theta} + i \cot \theta \frac{\partial}{\partial \varphi} + \frac{1}{\sin \theta} \right). \\ \hat{J}_z &= -i \frac{\partial}{\partial \varphi}\end{aligned}\tag{9}$$

Нетрудно убедиться, что $\hat{J}_+, \hat{J}_-, \hat{J}_z$ удовлетворяют перестановочным соотношениям для компонент момента импульса, а оператор $\hat{G}$ может быть представлен в виде

$$\hat{G} = \frac{1}{2} (\hat{J}_+ \hat{J}_- + \hat{J}_- \hat{J}_+) + \hat{J}_z^2 - 2 = \hat{J}^2 - 2.\tag{10}$$

Таким образом, задача о нахождении спектра элементарных возбуждений над скирмионным состоянием сводится к задаче о собственных функциях и собственных значениях квадрата момента импульса.

Раскладывая a по собственным функциям квадрата момента

$$\begin{aligned}a(\Omega) &= \sum_{JM} a_{JM} \psi_{JM}(\Omega) \\ \mathbf{J}^2 \psi_{JM} &= J(J+1) \psi_{JM}, \\ \Omega &= (\theta, \varphi)\end{aligned}\tag{11}$$

получим гамильтониан системы невзаимодействующих пространственных ротаторов:

$$\begin{aligned}H &= \varepsilon_0 Q + \sum_{J=1}^{\infty} \sum_{M=-J}^J E_J |a_{JM}|^2 \\ E_J &= \frac{1}{2} JS^2 [J(J+1) - 2]\end{aligned}\tag{12}$$

Отсутствие решения с $J=0$ непосредственно следует из определения $\hat{J}_+, \hat{J}_-, \hat{J}_z$ по формулам (9). Минимальное значение E_J , равное 0, соответствует $J=1$, следовательно, скирмионные конфигурации представляют собой устойчивые состояния.

Следует отметить, что полученные результаты становятся неверными в случае квантового гейзенберговского магнетика. Действительно, решая задачу об элементарных возбуждениях вблизи неоднородных собственных состояний гейзенберговского спинового гамильтониана, мы получим гамильтониан, имеющий вид (6), в котором a^*, a должны быть заменены на операторы рождения и уничтожения бозонов a^+, a :

$$[a(\mathbf{r}), a^+(\mathbf{r}')]^\dagger = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}').$$

Дальнейший переход от интегрирования по плоскости к интегрированию по сфере дает выражение, аналогичное (12)

$$H = \varepsilon_0 Q + \sum_{J=1}^{\infty} \sum_{M=-J}^J E_J a_{JM}^+ a_{JM}. \quad (14)$$

Однако операторы a_{JM}, a_{JM}^+ уже не удовлетворяют перестановочным соотношениям для бозонов, и вопрос о диагонализации гамильтониана (14) остается открытым.

Литература

1. T. Skyrme. Proc. Roy. Soc. London, Ser.A247, p.260-278, 1958.
2. T. Skyrme. Proc. Roy. Soc. London, Ser.A252, p.236-245, 1959.
3. T. Skyrme. Proc. Roy. Soc. London, Ser.A260, p.127-139, 1961.
4. А.А. Белавин, А.М. Поляков. Письма в ЖЭТФ, т.22, вып.10, с.503-506, 1975.

ELEMENTARY EXCITATIONS IN TWO-DIMENSIONAL CLASSICAL FERROMAGNET

S.I. Belov

Kazan State University, Kazan, Russia

The inhomogeneous skyrmion states of two-dimensional classical ferromagnet were shown to be stable spin configurations. The energy spectrum of elementary excitations above the skyrmion background was obtained.

POLARON EFFECTS IN EXTENDED HUBBARD MODEL

I. Eremin¹, M.V. Eremin²

¹ *Institut für Theoretische Physik, Freie Universität, Berlin, , Germany*

² *Physics Department, Kazan State University, 420008 Kazan, Russia*

Starting from the three-band p - d Hubbard Hamiltonian we derive the effective t - J model Hamiltonian including electron-phonon interaction of quasiparticles with optical phonons and strong electron correlations. We consider two possible cases when the carriers move over the oxygen sites and also if they move over the copper sublattice. Most importantly, we find that the phonon renormalization of t is quite different in both cases. Within an effective Hamiltonian we analyze the influence of phonons on the dynamical spin susceptibility in layered cuprates. For example, we find an isotope effect on resonance peak in the magnetic spin susceptibility, $\text{Im}\chi(\mathbf{q},\omega)$, seen by inelastic neutron scattering. It experimental observation would be a strong argument in favor of polaronic character of the carrier motion in layered cuprates.

Introduction

An understanding of the elementary and the spin excitations in high- T_c cuprates is of central significance. For example, it is known that the Cooper-pairing scenario via the exchange of antiferromagnetic spin fluctuations was quite successful in explaining the various features of superconductivity in hole-doped cuprates such as $d_{x^2-y^2}$ -wave symmetry of the superconducting order parameter and its feedback on the elementary and spin excitations [1]. Most importantly, in this scenario the dynamical spin susceptibility, $\chi(\mathbf{q},\omega)$, controls mainly the superconducting and normal state properties of the layered cuprates [1]. One of the key experimental fact in the phenomenology of high- T_c cuprates is the occurrence of a so-called resonance peak in the inelastic neutron scattering (INS) experiments [2,3]. It occurs below T_c in the dynamical spin susceptibility, $\chi(\mathbf{q},\omega)$, at the antiferromagnetic wave vector $\mathbf{Q}=(\pi,\pi)$ and $\omega \approx \omega_{\text{res}}$ which is of the order of 40 meV in the optimally doped cuprates. Its feedback in various electronic properties like optical conductivity, Raman response function, and elementary excitations has been observed experimentally by various techniques [1]. Furthermore, its successful explanation within spin-fluctuation-mediated Cooper-pairing together with $d_{x^2-y^2}$ -wave symmetry of the superconducting order parameter favors this scenario as a basic one for superconductivity in the cuprates. On the other hand, recent experiments indicate that also electron-phonon interaction influences strongly their behavior [4,5,6,7]. In particular, the observation of the relatively large isotope effect in various characteristics of cuprates like penetration depth [4], 'kink'-structure seen by ARPES [8], and the

isotope effect on the EPR linewidth [9] still raises a question: what is the role of phonons in determining the superconducting properties of cuprates?

Here, we derive an effective t - J Hamiltonian where the hopping integral, t , and the superexchange interaction between neighboring spins, J , are renormalized by phonons. We analyze the influence of the electron-phonon interaction on the dynamical spin susceptibility in layered cuprates. In particular, we find an isotope effect on the resonance peak in the magnetic spin susceptibility, $\text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega)$. It results from both the electron-phonon coupling and the electronic correlation effects taken into account beyond random phase approximation (RPA) scheme. We show that even if the superconductivity is driven by the magnetic exchange the characteristic energy features of cuprates can be significantly renormalized by the strong electron-phonon interaction.

1 Effective Hamiltonian

We start from the atomic limit of the three-center (copper-oxygen-copper) p - d Hamiltonian

$$H_0 = \sum \varepsilon_a a_\sigma^\dagger a_\sigma + \sum \varepsilon_b b_\sigma^\dagger b_\sigma + \sum \varepsilon_c c_\sigma^\dagger c_\sigma + \\ + U_a n_\uparrow^a n_\downarrow^a + U_b n_\uparrow^b n_\downarrow^b + U_c n_\uparrow^c n_\downarrow^c + \sum \omega_q p_q^\dagger p_q \quad (1)$$

where $\varepsilon_{a,b}$ and ε_c are the on-site energies of the copper and the oxygen holes, $n_\sigma^a = a_\sigma^\dagger a_\sigma$ and $n_\sigma^b = b_\sigma^\dagger b_\sigma$ are the copper $3d$ and oxygen $2p$ hole densities for site i , respectively. $U_a = U_b$ and U_c refer to the on-site copper and oxygen Coulomb repulsion, respectively. p_q denotes the phonon creation operator and ω_q is a phonon energy dispersion. The hopping term between copper and oxygen

$$H_2 = \sum t_{ij} (b_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + c_{j\sigma}^\dagger b_{i\sigma}) + \sum t_{ij} (a_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + c_{j\sigma}^\dagger a_{i\sigma}) \quad (2)$$

and the electron-phonon interaction

$$H_1 = F = \sum g_a n^a (p_q + p_{-q}^\dagger) + \sum g_b n^b (p_q + p_{-q}^\dagger) + \sum g_c n^c (p_q + p_{-q}^\dagger), \quad (3)$$

we consider as a perturbation. Here, t_{ij} is a hopping term between copper and oxygen, g_l is a electron-phonon coupling strength at the site l . This notation is similar to the simplified Holstein model where the migrating charge interacts locally with breathing phonon modes forming electron-vibrational states.

General remarks on the perturbation theory. To derive an effective t - J Hamiltonian we employ the canonical Schrieffer-Wolf-like transformations $e^{-S} H e^S$ [10,11]. For determination of the S -matrix we perform the following iteration procedure

$$S = S_1 + S_2 + S_3 + S_4 + S_5, \quad (4)$$

where the indexes 1,2,3,4 and 5, correspond to the first, the second, and so on iterations, respectively. For example, the term S_l is determined by the following chain of equations

$$\begin{aligned} [H_0 S_1] &= -H_2, [H_0 S_2] = -[H_1 S_1], \\ [H_0 S_3] &= -[H_1 S_2] - \frac{1}{3}[[H_2 S_1] S_1], \\ [H_0 S_4] &= -[H_1 S_3] - \frac{1}{3}[[H_2 S_1] S_2] - \frac{1}{3}[[H_2 S_2] S_1], \\ [H_0 S_5] &= -[H_1 S_4] - \frac{1}{3}[[H_2 S_1] S_3] - \frac{1}{3}[[H_2 S_3] S_1] - \\ &\quad - \frac{1}{3}[[H_2 S_2] S_2] + \frac{1}{45}[[[H_2 S_1] S_1] S_1] S_1 \end{aligned} \quad (5)$$

where $[AB] = AB - BA$ are the commutator relation. Then, an effective Hamiltonian for the ground state configuration including sixth order perturbation theory terms can be written

$$H_{\text{eff}} = H_0 + H_1 + \frac{1}{2}[H_2 S] - \frac{1}{24}[[[H_2 S] S] S] + \frac{1}{144}[[[[[H_2 S] S] S] S] S]. \quad (6)$$

Note that using the decomposition (4) one can easily select the different items corresponding to the various orders of the perturbation theory. Quite generally we would like to mention that H_2 is a part of the Hamiltonian which matrix elements are nonzero between the excited and the ground state configurations. It is assumed that the energy distance between the excited and the ground state configurations is large enough with respect to H_2 . On the other hand, H_1 is a term which acts within the quasi-degenerate states of the excited and the ground state configurations. We also postulate that the energies associated with H_1 are smaller than the energy distance between the excited and the ground state configurations.

Polaronic reduction factor of hopping integral between cation sites. Let us consider first the correction to the hopping integral between cation (copper) sites (a and b) via intermediate anion (oxygen) site (c) shown in Fig. 1. In this case the large energy interval is $\Delta_{ac} = \varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a$ and it is further assumed that $\omega_a < |\Delta_{ac}|$

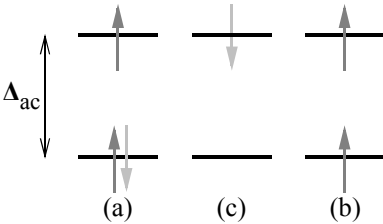


Fig. 1. Illustration of the effective hopping between the copper sites (a and b) via the intermediate oxygen position (c). In the ground state configuration ($\text{Cu}^{3+}\text{-O}^{2-}\text{-Cu}^{2+}$) there are two holes on the a site and one hole on the b site. The excited state configuration corresponds to ($\text{Cu}^{2+}\text{-O}^-\text{-Cu}^{2+}$) state

Polaron effects in extended Hubbard model

and $\Delta_{ac} \square \Delta_{bc}$. The first term in the renormalization of the effective hopping integral by electron-phonon interaction appears in the fourth order of the perturbation theory, namely, in the $\frac{1}{2}[H_2 S_3]$ which is quadratic with respect to the electron-phonon coupling operator

$$-\frac{1}{2}\left(\frac{1}{\Delta_{ca}}\right)^3 H_2[F[F H_2]] + h.c. = -\frac{1}{2}\left(\frac{1}{\Delta_{ca}}\right)^3 t_{ac} t_{cb} [g_c^2 + g_a^2] b_\sigma^+ a_\sigma, \quad (7)$$

and the effective hopping integral between the (a) and (b) states can be written as:

$$t_{b \rightarrow a}(eff) = \frac{t_{ac} t_{cb}}{\Delta_{ab}} \left\{ 1 - \frac{g_a^2}{\omega_a^2} + \frac{g_a^2 + g_c^2}{\Delta_{ca}^2} \right\}. \quad (8)$$

Note, the second term in the brackets has been included according to the usual polaronic theory when the intermediate step of charge transfer process via the oxygen site is ignored [11]. Taking into account the next orders of the perturbation theory one finds $\exp\{-\gamma_{ab} E_a / \omega_a\} \approx 1 - g_a^2 / \omega_a^2 + (g_a^2 + g_c^2) / \Delta_{ca}^2$ and thus

$$\gamma_a = \left\{ 1 - \omega_a \frac{\omega_a + (E_c / E_a) \omega_c}{\Delta_{ca}^2} \right\}. \quad (9)$$

Here, we use $g_i^2 = E_i \omega_i$, $i = a, b$. Note, the exponential factor is reduced by the factor γ_a . On the other hand, the dependence of the effective hopping integral on the quasiparticle mass slightly enhances. For example, for the oxygen isotope coefficient determined by $\alpha_m = -d \ln[1/t_{ab}(eff)]/d \ln M$ we obtain

$$\alpha_a = -\frac{E_a}{2\omega_a} \left[\gamma_0 + \left(\frac{\omega_a}{\Delta_{ac}} \right)^2 \right], \quad (10)$$

where γ_0 is an empirical factor $0 < \gamma_0 < 1$. According to the recent experiments in $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{MnO}_3$ the isotope coefficient was found to be $\alpha_m \square -1.2$ [12]. In particular, Eq. (10) agrees with the experimental observation, if we assume that the carriers (electrons) move over the manganese positions.

Effective hopping integral between oxygen states. Let us now turn to the discussion of the renormalization of the effective hopping between the oxygen positions. Note, in the cuprates it seems to play the most important role, since the

effective carries are supposed to move over the oxygen positions rather on the copper ones. The corresponding process is illustrated in Fig. 2.

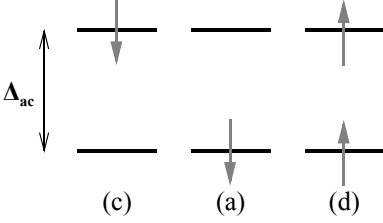


Fig. 2: Illustration of the first step in the effective hopping between the oxygen sites (c and d) via the intermediate copper position (a). In the ground state configuration ($O^{2-}-Cu^{2+}-O$) there are two holes on the a and d-sites, respectively. The excited state configuration corresponds to ($O^- - Cu^+ - O^-$)

Using the similar procedure as before we find

$$t_{d \rightarrow c}(eff) = \frac{t_{da}t_{ac}}{\Delta_{da}} \left\{ 1 - \frac{g_c^2}{\omega_c^2} + \frac{g_a^2 + g_c^2}{2\Delta_{da}^2} \right\}, \quad (11)$$

and

$$\gamma_{cd} = 1 - \frac{g_a^2 + g_c^2}{2\Delta_{da}^2} \frac{\omega_c}{E_c}. \quad (12)$$

Note, the factor 1/2 appears because instead of $\langle c_\sigma^\dagger c_\sigma \rangle = 1$ we presently have $\langle a_\sigma^\dagger a_\sigma \rangle = 1/2$. For the oxygen isotope coefficient we also have

$$\alpha_{cd} \approx -\frac{E_a}{4} \frac{\omega_a}{\Delta_{ca}^2}, \quad (13)$$

where $\Delta_{ca} = \varepsilon_c - \varepsilon_a$. Note, the expected isotope effect is quite small. This is in contrast with those expected for the cuprates [16]. We will return to this problem later in the text.

Superexchange interaction. Let us also consider the charge transfer process suggested by Anderson [13] leading to the appearance of the superexchange interaction illustrated in Fig. 3. In particular, the phonon related correction to superexchange operator

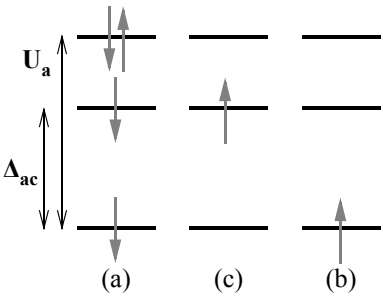


Fig. 3: Illustration of the superexchange interaction in the cuprates. The ground state configuration is characterized by the following configuration ($Cu^{2+}-O^{2-}-Cu^{2+}$) where two holes distributed on the two copper positions (a and b). In the excited state there are two configurations ($Cu^{2+}-O^- - Cu^+$) and ($Cu^{3+}-O^{2-}-Cu^+$). The hole is first migrating from site b to the oxygen site c and then to the copper site a. Note, that at $\Delta_{ac} \approx U_a > |t_{ca}|$ the hopping Hamiltonian containing t_{bc} can be included into H_I

$$H_{ex} = J_0[(S_a S_b) - \frac{n_a n_b}{4}] \quad (14)$$

appears in the sixth order of the perturbation theory and has the following operator form

$$\begin{aligned} H_{eff}^{(6)}(1) = & \frac{1}{2\Delta_{ca}^3 U_a} \{ H_2 H_1 H_1 S^{(3)} + H_2 [F, H_1 H_1 [F, H_2]] + H_2 [F [F, H_1 H_1 H_2]] \} + \\ & + \frac{1}{2\Delta_{ca}^3 U_a^2} \{ H_2 H_1 H_1 [F, H_1] [F, H_2] + H_2 H_1 H_1 [F, [F, H_2]] + \\ & + H_2 H_1 [F [F, H_1 H_2] + H_2 [F H_1] [F, H_1 H_2]] + \\ & + \frac{1}{2\Delta_{ca}^2 U_a^3} H_2 H_1 [F [F, H_1 H_2]] + h.c. \end{aligned} \quad (15)$$

In a general case, from $[H_0 S_1] = -H_2$ we deduce that

$$\begin{aligned} S_1 = & C_1 (a_\sigma^\dagger c_\sigma - c_\sigma^\dagger a_\sigma) + C_2 (n_\downarrow^a a_\uparrow^\dagger c_\uparrow + n_\uparrow^a a_\downarrow^\dagger c_\downarrow - c_\uparrow^\dagger a_\uparrow n_\downarrow^a - c_\downarrow^\dagger a_\downarrow n_\uparrow^a) + \\ & + C_3 (a_\uparrow^\dagger c_\uparrow n_\downarrow^c + a_\downarrow^\dagger c_\downarrow n_\uparrow^c - n_\downarrow^c c_\uparrow^\dagger a_\uparrow - n_\uparrow^c c_\downarrow^\dagger a_\downarrow) + \\ & + C_4 (n_\downarrow^a a_\uparrow^\dagger c_\uparrow n_\downarrow^c + n_\uparrow^a a_\downarrow^\dagger c_\downarrow n_\uparrow^c - n_\downarrow^c c_\uparrow^\dagger a_\uparrow n_\downarrow^a - n_\uparrow^c c_\downarrow^\dagger a_\downarrow n_\uparrow^a) \end{aligned} \quad (16)$$

where $C_1 = t_{ca}/(\varepsilon_c - \varepsilon_a)$, $C_2 = U_a C_1/(\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a)$, $C_3 = U_c C_1/(\varepsilon_a - \varepsilon_c - U_c)$, and $C_4 = -(C_2 U_c - C_3 U_a)/(\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a + U_c)$. Note, the first term describes the hopping of the electron between empty states. On the other hand, the first and second terms together account for hopping between the doubly occupied a and the empty c states. Namely, $C_1 + C_2 = t_{ca}/(\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a)$. Finally, the first and third terms describe the hopping between the doubly occupied c and empty a sites, i.e. $C_1 + C_3 = t_{ca}/(\varepsilon_c - \varepsilon_a + U_c)$.

The solution of the equation $[H_0 S_2] = -[H_1 S_1]$ has the same operator form as for S_1 but with new coefficients C'_1, C'_2, C'_3, C'_4 which are determined by

$$\begin{aligned} C'_1 = & \frac{C_1}{\varepsilon_c - \varepsilon_a} (\Phi_a - \Phi_c) \\ C'_2 = & \frac{U_a C'_1}{\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a} + \frac{C_2}{\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a} (\Phi_a - \Phi_c) \\ C'_3 = & \frac{U_c C'_1}{\varepsilon_a - \varepsilon_c - U_c} - \frac{C_3}{\varepsilon_a - \varepsilon_c - U_c} (\Phi_a - \Phi_c) \\ C'_4 = & -\frac{C'_2 U_c - C'_3 U_a}{\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a + U_c} + \frac{C_4}{\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a + U_c} (\Phi_a - \Phi_c) \end{aligned} \quad (17)$$

where $\Phi_a - \Phi_c = \sum g_a(p_q + p_{-q}^+) - \sum g_c(p_q + p_{-q}^+)$. Note, one finds here $C'_1 + C'_2 + C'_3 + C'_4 = t_{ca}(\Phi_a - \Phi_c)/(\varepsilon_c - \varepsilon_a + U_c - U_a)^2$. Finally, the equation $[H_0 S_3] = -[H_1 S_2] - [[H_2 S_1] S_1]/3$ yields the S_3 in the form of S_1 but also with new coefficients

$$\begin{aligned} C_1'' &= \frac{C_1'}{\varepsilon_c - \varepsilon_a} (\Phi_a - \Phi_c) \\ C_2'' &= \frac{U_a C_1''}{\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a} + \frac{C_2'}{\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a} (\Phi_a - \Phi_c) \\ C_3'' &= \frac{U_c C_1''}{\varepsilon_a - \varepsilon_c - U_c} - \frac{C_3'}{\varepsilon_a - \varepsilon_c - U_c} (\Phi_a - \Phi_c) \\ C_4'' &= -\frac{U_c C_2'' - U_a C_3''}{\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a + U_c} + \frac{C_4'}{\varepsilon_c - \varepsilon_a - U_a + U_c} (\Phi_a - \Phi_c) \end{aligned} \quad (18)$$

It is also useful to point out that

$$C_1'' + C_2'' + C_3'' + C_4'' = -t_{ca}(\Phi_a - \Phi_c)^2/(\varepsilon_c - \varepsilon_a + U_c - U_a)^3.$$

The other commutators are calculated straightforwardly

$$\begin{aligned} [F, H_2] &= (\Phi_a - \Phi_c) \sum t_{ac}(a_\sigma^+ c_\sigma - c_\sigma^+ a_\sigma) \\ [F, H_1] &= (\Phi_b - \Phi_c) \sum t_{bc}(b_\sigma^+ c_\sigma - c_\sigma^+ b_\sigma) \\ [F, H_1 H_2] &= (\Phi_a - \Phi_b) \sum t_{ac} t_{cb}(b_\sigma a_\sigma^+ - a_\sigma b_\sigma^+) \\ [F, H_1 H_1 H_2] &= (\Phi_a - \Phi_c) \sum t_{bc} t_{ac} t_{cb}(b_\sigma^+ c_\sigma b_\sigma a_\sigma^+ - a_\sigma b_\sigma^+ c_\sigma^+ b_\sigma) \end{aligned} \quad (19)$$

and the effective Hamiltonian in the sixth order of the perturbation theory has the form

$$\begin{aligned} H_{\text{eff}}^{(6)}(1) &= \frac{t_{ac}^2 t_{cb}^2}{2\Delta_{ca}^2 U_a} \left\{ \frac{3}{\Delta_{ca}^2} [\langle \Phi_a^2 \rangle + \langle \Phi_c^2 \rangle] + \right. \\ &\quad \left. + \frac{2}{\Delta_{ca} U_a} \langle \Phi_a^2 \rangle + \frac{1}{U_a^2} [\langle \Phi_a^2 \rangle + \langle \Phi_b^2 \rangle] \right\} a_\downarrow b_\downarrow^+ b_\downarrow a_\downarrow^+ + h.c. \end{aligned} \quad (20)$$

where $\langle \Phi_i^2 \rangle$ are the usual averaged phonon factors $\langle \Phi_i^2 \rangle = g_i^2 (2n_q + 1) = g_i^2 \coth(\omega_i/2k_b T) \approx g_i^2$. Introducing the polaronic energy $E_i = g_i^2/\omega_i$ we arrive to the final formula for the superexchange integral

$$J = J_0 \left\{ 1 + \left[\frac{3}{\Delta_{ca}^2} + \frac{2}{\Delta_{ca} U_a} + \frac{2}{U_a^2} \right] E_a \omega_a + \frac{3E_c}{\Delta_{ca}^2} \omega_c \right\}. \quad (21)$$

For simplicity we assume a and b centers to be equivalent, J_0 is the superexchange interaction without polaronic effects. Note, the term $2\omega_a/U_a^2$ was found earlier by

Kugel and Khomskii [11]. The present result explains well the isotope shift of Neel temperature in undoped compounds [28].

To summarize, the matrix of the unitary transformation for the initial Hamiltonian was found by excluding the odd terms with respect to the hopping integral with an accuracy up to the sixth order perturbation theory. Note, in the second order perturbation the effective hopping integral, t_{ij} , appears.

It is further renormalized by the electron-phonon interaction in the fourth order term where we introduce the average over the phonons. Similarly, the superexchange interaction occurs in the fourth order perturbation theory and its renormalization takes place in the sixth order term.

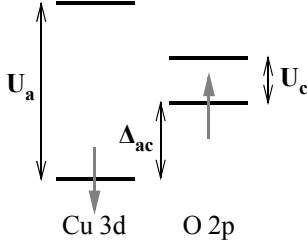


Fig. 4: Illustration of the copper-oxygen singlet formation on the square lattice. The additional doped hole cannot go to the copper site due to strong on-site Coulomb repulsion and is distributed among four oxygen sites forming together with the copper spin a Zhang-Rice singlet

Singlet-correlated band model. In order to illustrate the effective model we show in Figs.4-5 the simplified energy level scheme for two holes in the elementary unit cell. There are two copper upper and lower Hubbard bands with the energy splitting of about $U_a \sim 6\text{ eV}$. At half-filling the lower Hubbard band is completely filled which corresponds to $\text{Cu}^{2+}(3d^9)$ orbital configuration. Via doping an additional oxygen hole $\text{O}^-(2p^5)$ resides on four neighboring oxygen sites (bonding molecular orbitals). The charge transfer gap $\Delta_{ac} \sim 1.5\text{ eV}$. A kinetic exchange interaction between copper and oxygen holes occurs due to a virtual hopping back and forth of the oxygen hole to the upper copper Hubbard band.

$$H_{ex}^{pd} \propto t_{\sigma}^2 \left[\frac{6}{U_a - \Delta_{pd}} + \frac{1.5}{\Delta_{ac} + U_c} \right] \left[(\mathbf{s}_p \mathbf{s}_d) - \frac{n_p n_d}{4} \right]. \quad (22)$$

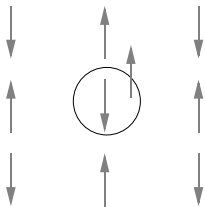


Fig. 5. Illustration of the copper-oxygen singlet movement on the square lattice

Since the copper-oxygen transfer integral along σ -bond is large ($t_{\sigma} \sim 1.2\text{ eV}$), this exchange coupling is very strong and leads to a copper-oxygen singlet formation [15]. An additional stabilization of the copper-oxygen singlet state takes place (about 0.5 eV) if one assumes that the lifetime of the singlet at a lattice site i is larger than the relaxation time of the local distortions. Indeed due to a local oxygen contraction around the copper the value of t_{σ}^2 strongly

increases. Thus, one arrives to the copper-oxygen singlet polaron motion with an exponential factor $\gamma^* E_a^* / \omega_a^*$.

Finally, the relevant effective Hamiltonian is given by

$$H = \sum_{ij} t_{ij} \Psi_i^{pd,\sigma} \Psi_j^{\sigma,pd} + \sum_{i>j} J_{ij} \left[(\mathbf{S}_i \mathbf{S}_j) - \frac{n_i n_j}{4} \right]. \quad (23)$$

The index pd corresponds to a Zhang-Rice singlet formation with one hole placed on the copper site whereas the second hole is distributed on the neighboring oxygen sites [15]. Namely, $\Psi_i^{pd,\uparrow} = [X_i^{\uparrow,\downarrow} P_i^{\uparrow,0} - X_i^{\uparrow,\uparrow} P_i^{\downarrow,0}] / \sqrt{2}$ is the copper-oxygen creation operator in terms of copper (X) and oxygen (P) projecting operators. One can check that copper-oxygen exchange term $J_{pd} [(\mathbf{S}_p \mathbf{S}_d) - n_d n_p / 4]$ is diagonal by introducing $\Psi^{pd,\sigma}$ and $\Psi^{\sigma,pd}$ operators, i.e. $i \partial \Psi_i^{pd,\sigma} / \partial t = (J_{pd} / 2) \Psi_i^{pd,\sigma}$.

Note, in general case the effective Hamiltonian contains also the Coulomb interaction between doped holes and the interaction of quasiparticles via the phonon field. We dropped these terms here, because they do not contribute directly to the spin susceptibility. The hopping matrix element is $t_{ij} = t_{ij}^0 \exp(-\gamma E_i^* / \omega_i^*) [(1+\delta)/2 + 2\langle S_i S_j \rangle / (1+\delta)]$ where t_{ij}^0 is the bare hopping integral. The exponential factor takes into account electron-phonon interaction, $E_i = (g_i^*)^2 / \omega_i^*$ is the so-called polaron stabilization energy of the copper-oxygen singlet state and $0 < \gamma < 1$. From the experimental data [16] the whole exponential factor was estimated to be $\gamma E_i^* / \omega_i^* \approx 0.92$ around the optimal doping. Note, its value is increasing upon decreasing doping. The effect of the copper spin correlations is described by the square brackets. In particular, one sees that for the antiferromagnetic square lattice the hopping between nearest neighbors vanishes. This is illustrated in Fig. 5. As one sees the oxygen hole cannot move between the copper sites with antiparallel spin orientation. Furthermore, there is no more than one oxygen hole per each unit cell. Then, the spectral weight of the singlet-correlated band changes upon doping similar to that of the upper Hubbard band. The half-filling is already reached at $\delta = 1/3$. This doping level we will refer to the optimal doping. We show in Fig. 6 the doping evolution of the spectral weight for the lower Hubbard (copper) band and singlet-correlated (copper-oxygen) band. Note, the latter is completely filled for $\delta = 1$.

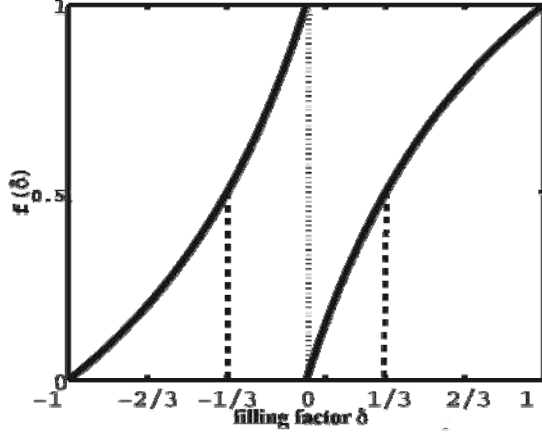


Fig. 6. The spectral weight of the lower Hubbard (copper) band ($-1 < \delta < 0$) and the singlet-correlated (copper-oxygen) band ($0 < \delta < 1$). Note, the optimal doping corresponds to the half-filled copper-oxygen band which is reached for $\delta = 1/3$

In the following section we will discuss the resonance peak seen by Inelastic Neutron Scattering (INS) in high- T_c cuprates. We will show that its position might be sensitive to the renormalization of the hopping integral and could be a good test for the polaronic nature of carrier motion in cuprates.

2. Dynamical spin susceptibility

To derive the dynamical spin susceptibility in the superconducting state we use the method suggested by Hubbard and Jain [18] that allows to take into account strong electronic correlations. First we add the external magnetic field applied along c -axis into the effective Hamiltonian

$$H_i = \text{Re} \sum_{\mathbf{q}} h_{\mathbf{q}} e^{-i(\omega t - \mathbf{q} \mathbf{R}_i)} . \quad (24)$$

Then we write an equation of motion for the Ψ operators using the Roth-type of the decoupling scheme [19] and expanding the

$$P_{pd}^{\sigma} = \left\{ \Psi_i^{\sigma, pd} \Psi_i^{pd, \sigma} \right\} = (1 + \delta_i)/2 + \sigma \text{Re} \sum_{\mathbf{q}} \left[S_{\mathbf{q}}^z e^{i(\mathbf{q} \mathbf{R}_i - \omega t)} \right]$$

up to the first order in $S_{\mathbf{q}} = \chi^z(\mathbf{q}, \omega) h_{\mathbf{q}}$. In particular,

$$i \frac{\partial \Psi_{\mathbf{k}}^{-\sigma, pd}}{\partial t} = (\varepsilon_{\mathbf{k}} - \mu) \Psi_{\mathbf{k}}^{-\sigma, pd} + \Delta_{\mathbf{k}} \Psi_{-\mathbf{k}}^{pd, \sigma} + \left[\left(\frac{J_{\mathbf{q}}}{2} - t_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} \right) S_{\mathbf{q}} - \frac{h_{\mathbf{q}}}{2} \right] \Psi_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{-\sigma, pd} e^{-i\omega t} \quad (25)$$

and the similar expression occurs for $\Psi_{-\mathbf{k}}^{pd, \sigma}$. Here, $\Delta_{\mathbf{k}} = (\Delta_0/2)(\cos k_x - \cos k_y)$ is the $d_{x^2-y^2}$ -wave superconducting gap, $J_{\mathbf{q}} = J(\cos k_x + \cos k_y)$ is the Fourier transform of the superexchange interaction on a square lattice.

Using the Bogolyubov-like transformations to the new quasiparticle states

$$\begin{aligned} \alpha_{\mathbf{k}}^{-\sigma, pd} &= u_{\mathbf{k}} \Psi_{\mathbf{k}}^{-\sigma, pd} + v_{\mathbf{k}} \Psi_{-\mathbf{k}}^{pd, \sigma}, \\ \alpha_{-\mathbf{k}}^{pd, \sigma} &= u_{\mathbf{k}} \Psi_{-\mathbf{k}}^{pd, \sigma} - v_{\mathbf{k}} \Psi_{\mathbf{k}}^{-\sigma, pd}. \end{aligned} \quad (26)$$

where $u_{\mathbf{k}}^2 = (1/2)(1 + (\varepsilon_{\mathbf{k}} - \mu)/E_{\mathbf{k}})$ and $v_{\mathbf{k}}^2 = (1/2)(1 - (\varepsilon_{\mathbf{k}} - \mu)/E_{\mathbf{k}})$ are the Bogolyubov coefficients, μ is a chemical potential, and $E_{\mathbf{k}} = \sqrt{(\varepsilon_{\mathbf{k}} - \mu)^2 + \Delta_{\mathbf{k}}^2}$ is the energy dispersion in the superconducting state, we obtain the new equations of motion for the α operators

$$\begin{aligned} i \frac{\partial \alpha_{\mathbf{k}}^{\downarrow, pd}}{\partial t} &= E_{\mathbf{k}} \alpha_{\mathbf{k}}^{\downarrow, pd} + M_{\mathbf{kq}} (u_{\mathbf{k}} \Psi_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{\downarrow, pd} + v_{\mathbf{k}} \Psi_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{pd, \uparrow}) \exp(-i\omega t), \\ i \frac{\partial \alpha_{-\mathbf{k}}^{pd, \uparrow}}{\partial t} &= -E_{\mathbf{k}} \alpha_{\mathbf{k}}^{\downarrow, pd} + M_{\mathbf{kq}} (u_{\mathbf{k}} \Psi_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{pd, \uparrow} - v_{\mathbf{k}} \Psi_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{\downarrow, pd}) \exp(-i\omega t). \end{aligned} \quad (27)$$

Here, we have introduced the notation $M_{\mathbf{kq}} = (J_{\mathbf{q}}/2 - t_{\mathbf{k}-\mathbf{q}})S_{\mathbf{q}} - h_{\mathbf{q}}/2$. It is further useful to re-write these equations in the form.

$$\begin{aligned} i \frac{\partial \alpha_{\mathbf{k}}^{\downarrow, pd}}{\partial t} - E_{\mathbf{k}} \alpha_{\mathbf{k}}^{\downarrow, pd} &= \\ &= M_{\mathbf{kq}} \left[(u_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + v_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}) \alpha_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{\downarrow, pd} + (u_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}} - u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}) \alpha_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{pd, \uparrow} \right] \exp(-i\omega t) \end{aligned} \quad (28)$$

and

$$\begin{aligned} i \frac{\partial \alpha_{-\mathbf{k}}^{pd, \uparrow}}{\partial t} + E_{\mathbf{k}} \alpha_{-\mathbf{k}}^{pd, \uparrow} &= \\ &= M_{\mathbf{kq}} \left[(u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} - v_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}) \alpha_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{\downarrow, pd} + (u_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + v_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}) \alpha_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{pd, \uparrow} \right] \exp(-i\omega t) \end{aligned} \quad (29)$$

Polaron effects in extended Hubbard model

which could be solved by the iteration procedure. Because the quantities $M_{\mathbf{k}\mathbf{q}}$ are assumed to be small one can put into the right hand sides of Eqs. (28)-(29) the time dependence of the quasiparticle operators in the absence of the external magnetic field, *i.e.* $\alpha_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{\downarrow,pd} = \alpha_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{\downarrow,pd}(0) \exp(-iE_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}t)$, $\alpha_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{pd,\uparrow} = \alpha_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{pd,\uparrow}(0) \exp(iE_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}t)$. Then the solution can be written as

$$\begin{aligned} \alpha_{\mathbf{k}}^{\downarrow,pd} = & \alpha_{\mathbf{k}}^{\downarrow,pd}(0) \exp(-iE_{\mathbf{k}}t) + B_1 \alpha_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{\downarrow,pd}(0) \exp[-i(E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + \omega)t] + \\ & + B_2 \alpha_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{pd,\uparrow}(0) \exp[i(E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} - \omega)t] \end{aligned} \quad (30)$$

where the coefficients are:

$$\begin{aligned} B_1 = & \frac{M_{\mathbf{k}\mathbf{q}}(u_{\mathbf{k}}u_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + v_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}-\mathbf{q}})}{-E_{\mathbf{k}} + E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + \omega} \\ B_2 = & \frac{M_{\mathbf{k}\mathbf{q}}(u_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}v_{\mathbf{k}} - u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}-\mathbf{q}})}{-E_{\mathbf{k}} - E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + \omega}. \end{aligned} \quad (31)$$

Similarly, the solution of the next equation can be found:

$$\begin{aligned} \alpha_{-\mathbf{k}}^{pd,\uparrow} = & \alpha_{-\mathbf{k}}^{pd,\uparrow}(0) \exp(iE_{\mathbf{k}}t) + A_1 \alpha_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{\downarrow,pd}(0) \exp[-i(E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + \omega)t] + \\ & + A_2 \alpha_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{pd,\uparrow}(0) \exp[i(E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} - \omega)t] \end{aligned} \quad (32)$$

with coefficients

$$A_1 = \frac{M_{\mathbf{k}\mathbf{q}}(u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} - u_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}v_{\mathbf{k}})}{E_{\mathbf{k}} + E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + \omega}, \quad A_2 = \frac{M_{\mathbf{k}\mathbf{q}}(u_{\mathbf{k}}u_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + v_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}-\mathbf{q}})}{E_{\mathbf{k}} - E_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} + \omega}. \quad (33)$$

The expression for the longitudinal component of the dynamical spin susceptibility can be obtained from the relation

$$\langle \Psi_i^{pd,\uparrow} \Psi_i^{\uparrow,pd} \rangle - \langle \Psi_i^{pd,\downarrow} \Psi_i^{\downarrow,pd} \rangle = 0. \quad (34)$$

For example, for the spin 'up' we have

$$\langle \Psi_i^{pd,\uparrow} \Psi_i^{\uparrow,pd} \rangle = \frac{1}{N} \sum \langle \Psi_{\mathbf{k}}^{pd,\uparrow} \Psi_{\mathbf{k}'}^{\uparrow,pd} \rangle e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\mathbf{R}_i} = \delta_i + \frac{1}{N} \sum \langle \Psi_{\mathbf{k}}^{pd,\uparrow} \Psi_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow,pd} \rangle e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_i}. \quad (35)$$

Note, the last term has the same exponential factor ($e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_i}$) as for external magnetic field. Then the correlation function can be found

$$\begin{aligned} \frac{1}{N} \sum \langle \Psi_{\mathbf{k}}^{pd,\uparrow} \Psi_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow,pd} \rangle e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_i} &= \frac{1}{N} \sum \left\{ u_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \langle \alpha_{\mathbf{k}}^{pd,\uparrow} \alpha_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow,pd} \rangle + v_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \langle \alpha_{-\mathbf{k}}^{pd,\downarrow} \alpha_{-\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{\downarrow,pd} \rangle + \right. \\ &\quad \left. + u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \langle \alpha_{\mathbf{k}}^{pd,\uparrow} \alpha_{-\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{pd,\downarrow} \rangle + v_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \langle \alpha_{-\mathbf{k}}^{\downarrow,pd} \alpha_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow,pd} \rangle \right\} e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_i}. \end{aligned} \quad (36)$$

Substituting in the *rhs* the solution for the quasiparticle operators (30) and (32) one can see that each correlation function gives two terms which are proportional to $M_{\mathbf{k}\mathbf{q}}$. For example, in the function $\langle \alpha_{\mathbf{k}}^{pd,\uparrow} \alpha_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow,pd} \rangle$ one obtains the first term after substitution $\alpha_{\mathbf{k}}^{pd,\uparrow}$ and taking the linear correction with respect to the magnetic field into account. Similarly, the second item arises from the substitution of operator $\alpha_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow,pd}$. Note, we use $\langle \alpha_{\mathbf{k}}^{pd,\downarrow}(0) \alpha_{\mathbf{k}}^{\downarrow,pd}(0) \rangle = P_{pd} f_{\mathbf{k}}$ and $\langle \alpha_{\mathbf{k}}^{\downarrow,pd}(0) \alpha_{\mathbf{k}}^{pd,\downarrow}(0) \rangle = P_{pd}(1-f_{\mathbf{k}})$, where $f_{\mathbf{k}} = 1/[1 + \exp(E_{\mathbf{k}}/k_B T)]$ is the usual Fermi function.

Finally, after straightforward calculations and using the following definition

$$S_{\mathbf{q}}^z = \chi^z(\mathbf{q}, \omega) h_{\mathbf{q}} \quad (37)$$

one obtains the expression for the dynamical spin susceptibility in the form

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi_0(\mathbf{q}, \omega)}{J_{\mathbf{q}} \chi_0(\mathbf{q}, \omega) + \Pi(\mathbf{q}, \omega) + Z(\mathbf{q}, \omega)} \quad (38)$$

This is a central result of our paper. Here, $\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$ is the usual BCS-like Lindhard response function, $\Pi(\mathbf{q}, \omega)$ and $Z(\mathbf{q}, \omega)$ result from the strong electronic correlation effects. In the normal state the expression for $\Pi(\mathbf{q}, \omega)$ has been obtained by Hubbard and Jain [18]. In the superconducting state it is given by

$$\begin{aligned} \Pi(\mathbf{q}, \omega) &= \frac{P_{pd}}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ u_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \left(u_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + v_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \right) \frac{t_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}} - t_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{\omega + i0^+ + E_{\mathbf{k}} - E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}} + \right. \\ &\quad \left. + v_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \left(v_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + u_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \right) \frac{t_{\mathbf{k}} (1-f_{\mathbf{k}}) - t_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} (1-f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})}{\omega + i0^+ - E_{\mathbf{k}} + E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}} + \right. \\ &\quad \left. + u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \left(u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}} \right) \frac{t_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}} - t_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} (1-f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})}{\omega + i0^+ + E_{\mathbf{k}} + E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}} + \right. \\ &\quad \left. + u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}} \left(v_{\mathbf{k}} u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - u_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \right) \frac{t_{\mathbf{k}} (1-f_{\mathbf{k}}) - t_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{\omega + i0^+ - E_{\mathbf{k}} - E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}} \right\}. \end{aligned} \quad (39)$$

The function $Z(\mathbf{q}, \omega)$ is written as follows

$$Z(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\omega + i0^+}{\omega + i0^+ + \varepsilon_{\mathbf{k}}^{(1)} - \varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(1)}}. \quad (40)$$

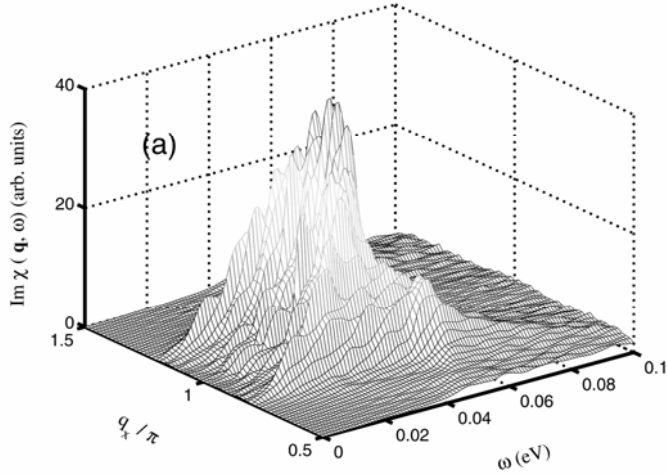
Here, $f_{\mathbf{k}}$ is the Fermi distribution function, $\varepsilon_{\mathbf{k}}^{(1)} = (1-\delta)t_{\mathbf{k}}/2$, $\varepsilon_{\mathbf{k}} = P_{pd}t_{\mathbf{k}}$ is the energy dispersion in the normal state, and

$$t_{\mathbf{k}} = 2t(\cos k_x + \cos k_y) + 4t' \cos k_x \cos k_y + 2t''(\cos 2k_x + \cos 2k_y)$$

is the Fourier transform of the hopping integral on a square lattice including nearest, next- and next-next-nearest neighbor hopping, respectively. The origin of the terms $\Pi(\mathbf{q}, \omega)$ and $Z(\mathbf{q}, \omega)$ relates to the no double occupancy constraint. In particular, for the Coulomb repulsion $U = \infty$ and $J = 0$ the dynamical spin susceptibility does not reduce to the standard Lindhard response function but is renormalized by the electronic correlation effects [20]. For the $\Delta_{\mathbf{k}} = 0$ Eq. (37) agrees with the normal state result for the dynamical spin susceptibility [18,21,22].

Results and Discussion

Inelastic neutron scattering (INS) measurements probe directly the imaginary part of the dynamical spin susceptibility. Therefore, it is of interest to analyze the role played by the electronic correlations in connection with the 'resonance' peak seen by INS [3]. This feature is well understood using various approaches [23,24] as a result of the spin density wave (SDW) collective mode formation at $\omega = \omega_{res}$, *i.e.* when the denominator of the RPA spin susceptibility at the antiferromagnetic wave vector $\mathbf{Q}$ is close to zero.



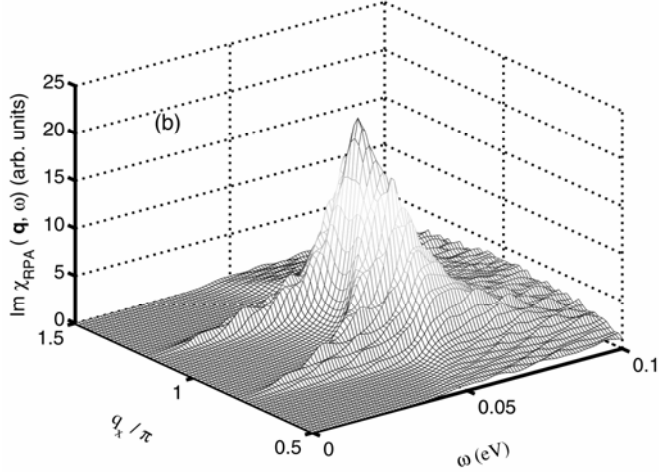


Fig. 7. Dispersion of the resonance peak calculated from Eq. (37) **(a)** as a function of frequency and q_x away from (π, π) . Two branches of the dispersion curves are in good agreement with recent experimental data [26]. For comparison we also put the RPA results **(b)** using the same parameters

Let us first concentrate on the influence of the electronic correlations beyond RPA on the resonance peak formation at $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$. In Fig. 7(a) we show results of our calculations for the $\text{Im } \chi(\mathbf{Q}, \omega)$ from Eq. (37) as a function of frequency and q_x ($q_y = \pi$) in the superconducting state. Here, we use $t = 200$, $t' = -20$, and $t'' = 4$ (in meV) at optimal doping. For comparison we also put RPA results using the same parameters in Fig. 7(b). Clearly, additional electronic correlations beyond RPA (Π and Z terms) affect significantly the $\text{Im } \chi$ behavior in the superconducting state. First, in contrast to the RPA the position of the resonance peak obtained from Eq. (37) is shifted to a lower frequencies. The main reason is that due to Π and Z -terms the resonance condition can be satisfied easily in a more wide range of parameters. Furthermore, its intensity is also much higher than in the RPA case. In addition, the upper branch of the resonance peak dispersion away from ω_{res} and $\mathbf{Q}_{AF}$ is much more pronounced. Note, these dispersion curves $\propto \mathbf{q}^2$ are in good agreement with experiment [25,26]. Finally, we discuss the influence of the electron-phonon interaction on the resonance peak formation by changing the isotope mass of ^{16}O by ^{18}O . This shifts the average frequency of the LO phonon mode and consequently renormalizes the hopping integral t

and the superexchange coupling constant, J . Most importantly, the electron-phonon interaction changes most dramatically the hopping integral t rather than the superexchange coupling J . In particular, the superexchange coupling constant J changes less than 1% upon substituting the isotopes [27] which agrees well with experimental data [28]. Therefore, there is almost no influence of the isotope substitution on the resonance peak determined from RPA, since in this approximation its formation is determined mainly by J . In particular, we find *within RPA* no change in the ω_{res} value upon changing the isotopes. In the case of Eq. (37) the most important contribution to the isotope effect on the resonance peak appears due to $\Pi(\mathbf{q}, \omega) \propto t_k$. In particular, using our estimation given above we find that at optimal doping the hopping integral changes by 6% upon replacing ^{16}O by ^{18}O . This results in the lowering of the resonance frequency at (π, π) from 41 meV for the ^{16}O isotope towards 39 meV for the ^{18}O sample. This leads to $\alpha_{res} = -d \ln \omega_{res} / d \ln M \approx 0.4$ for optimally-doped cuprates. This effect is beyond the experimental error and can be further tested experimentally. Furthermore, in the underdoped cuprates one may expect larger isotope effect due to a larger value of $\gamma E_i^* / \omega_i^*$ [16]. At the same time the superconducting transition temperature which is determined by J shows much weaker isotope effect and is around $\alpha_{T_c} \approx 0.05$ [27]. Therefore, even if the superconductivity is driven by the magnetic exchange the resonance peak formation can be significantly renormalized by the strong electron-phonon interaction.

Summary

To summarize, we analyze the influence of the electronic correlations and the electron-phonon interaction on the dynamical spin susceptibility in layered cuprates. The electronic correlations taken beyond RPA redistribute the spectral weight of the resonance peak away from (π, π) leading to the pronounced dispersion. This is in good agreement with recent INS data [25,26]. Furthermore, we find the isotope effect on the resonance peak due to strong coupling of the carriers to LO phonon mode. It results from both electron-phonon coupling and electronic correlation effects. In contrast to the small isotope effect on the superconducting transition temperature we find larger isotope coefficient on the resonance peak $\alpha_{res} \approx 0.4$ in optimally-doped cuprates. We also would like to note that the value of the isotope coefficient depends strongly on the value of the exponential factor. Therefore, the experimental verification of our prediction is desirable. In particular, it would put a strong constraint on the ingredients the theory of cuprates must contain.

The authors would like to express their gratitude to Prof. B.I. Kochelaev for fruitful and helpful discussions on intriguing modern problems of high- T_c and related materials and an honor to write an article for his "Festschrift". Using an opportunity we would like to wish him all the best for his 70-th birthday.

References

1. Chubukov A.V., Pines D., and Schmalian J., (2003). "A Spin Fluctuation Model for d-wave Superconductivity" in *The Physics of Conventional and Unconventional Superconductors* eds. by Bennemann K.H. and Ketterson J.B., Vol. 1 (Springer-Verlag).
2. He H., Bourges P., Sidis Y., Ulrich C., Regnault L.P., Pailhes S., Berzigiarova N.S., Kolesnikov N.N., and Keimer B., (2002). Magnetic Resonant Mode in the Single-Layer High-Temperature Superconductor $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$. *Science* 295, 1045-1047.
3. See for review Bourges P., (1998). "From Magnons to the Resonance Peak: Spin Dynamics in High- T_c Superconducting Cuprates by Inelastic Neutron Scattering" in *The Gap Symmetry and Fluctuations in High Temperature Superconductors* edited by Bok J., Deutscher G., Pavuna D., and Wolf S.A. (Plenum Press), pp.349-371.
4. Khasanov R., Eshchenko D.G., Luetkens H., Morenzoni E., Prokscha T., Suter A., Garifianov N., Mali M., Roos J., Conder K., and Keller H., (2003). The oxygen-isotope effect on the in-plane penetration depth in underdoped $Y_{1-x}Pr_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ as revealed by muon-spin rotation. *J. Phys.: Condens. Matter* 15, L17-L24.
5. McQueeney R.J., Sarrao J.L., Pagliuso P.G., Stephens P.W., and Osborn R., (2001). Mixed Lattice and Electronic States in High-Temperature Superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 87:077001.
6. Pintschovius L., Endoh Y., Reznik D., Hiraka H., Tranquada J.M., Reichardt W., Uchiyama H., Masui T., Tajima S., (2003). Evidence for Dynamic Charge Stripes in the Phonons of Optimally Doped YBCO. cond-mat/0308357 (unpublished).
7. For review of earlier results see Kulic M., (2000). Interplay of electron-phonon interaction and strong correlations: the possible way to high-temperature superconductivity. *Phys. Rep.* 338:1-264.
8. Lanzara A., private communication.
9. Shengelaya A., Keller H., Mueller K.A., Kochelaev B.I., and Conder K. (2001) Tilting mode relaxation in the electron paramagnetic resonance of oxygen-isotope-substituted $La_{2-x}Sr_xCuO_4:Mn^{2+}$. *Phys. Rev. B* 63: 144513.
10. Schrieffer J.R., and Wolf P.A., (1966). Relation between the Anderson and Kondo Hamiltonians. *Phys. Rev.* 149:491-492.

11. Kugel K.I., and Khomskii D.I., (1980). Polaron effects and exchange interaction in magnetic insulators with Jahn-Teller ions. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 79:987-1005 [*Sov. Phys. JETP* 52:501-515].
12. Alexandrov A.S., Zhao G.-M., Keller H., Lorenz B., Wang Y.S., and Chu C.W., (2001). Evidence for polaronic Fermi liquid in manganites. *Phys. Rev. B* 64:140404.
13. Anderson P.W., (1959). New Approach to the Theory of Superexchange Interaction. *Phys. Rev.* 115:2-13.
14. Eremin I., Kamaev O., and Eremin M.V., (2004). Possible isotope effect on the resonance peak formation in high- T_c cuprates. *Phys. Rev. B* 69:xxx (to be published).
15. Zhang F.C., and Rice T.M., (1988). Effective Hamiltonian for the superconducting Cu oxides. *Phys. Rev. B* 37:3759-3761.
16. Zhao G.-M., Hunt M.B., Keller H., and Mueller K.A., (1997). Evidence for polaronic supercarriers in the copper oxide superconductors $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Nature* 385:236-239.
17. Zhao G.-M., Keller H., and Conder K., (2001). Unconventional isotope effects in the high-temperature cuprate superconductors. *J. Phys.: Condens. Matter* 13:R569-R587.
18. Hubbard J., and Jain K.P., (1968). Generalized spin susceptibility in the correlated narrow-energy-band model. *J. Phys. C (Proc. Phys. Soc.), Ser. 2* 1:1650-1657.
19. Plakida N.M., Hayn R., and Richard J.L., (1995). Two-band singlet-hole model for the copper oxide plane. *Phys. Rev. B* 51:16599-16607.
20. Note, the term $Z(\mathbf{q}, \omega)$ in the dynamical spin susceptibility occurs in the higher order decoupling scheme for the Green's function. It originates from the spin fluctuations in the singlet pd -band and lower Hubbard (copper) band, which is in hole-doped cuprates is completely filled.
21. Zavidonov A.Yu., and Brinkmann D., (1998). Evolution of antiferromagnetic short-range order with doping in high- T_c superconductors. *Phys. Rev. B* 58:12486-12494.
22. Eremin M., Eremin I., and Varlamov S., (2001). Dynamical charge susceptibility in layered cuprates: Beyond the conventional random-phase-approximation scheme. *Phys. Rev. B* 64:214512. Eremin I., (1997), *Physica (Amsterdam) B*, 234-236, 792.
23. Morr D.K., and Pines D., (1998). The Resonance Peak in Cuprate Superconductors. *Phys. Rev. Lett.* 81:1086-1090; Onufrieva F., and Pfeuty P., (2002). Spin dynamics of a two-dimensional metal in a superconducting state: Application to the high- T_c cuprates *Phys. Rev. B* 65:054515; Manske D., Eremin I., and Bennemann K.H., (2001). Analysis of the resonance peak and magnetic coherence seen in inelastic neutron scattering of cuprate

- superconductors: A consistent picture with tunneling and conductivity data. *Phys. Rev. B* 63:054517.
24. Norman M.R., (2001). Magnetic collective mode dispersion in high-temperature superconductors. *Phys. Rev. B* 63:092509.
 25. Arai M., Nishijima T., Endoh Y., Egami T., Tajima S., Tomimoto T., Shiohara Y., Takahashi M., Garrett A., and Bennington S.M., (1999). Incommensurate Spin Dynamics of Underdoped Superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.7}$. *Phys. Rev. Lett.* 83:608-612.
 26. Reznik D., Bourges P., Pintschovius L., Endoh Y., Sidis Y., Shiokara Y., and Tajima S., (2003). Dispersion of Magnetic Excitations in Superconducting Optimally Doped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$. cond-mat/0307591 (unpublished).
 27. Eremin M.V., Eremin I.M., Larionov I.A., and Terzi A.V., (2002). Polaron Effects on Superexchange Interaction: Isotope Shifts of T_N , T_C , and T^* in Layered Copper Oxides. *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 75:467-470 [*JETP Lett.* 75:395-398].
 28. Zhao G.-M., Singh K.K., and Morris D.E., (1994). Oxygen isotope effect on Neel temperature in various antiferromagnetic cuprates. *Phys. Rev. B* 50:4112-4117.

К ТЕОРИИ ВЯЗКОУПРУГОСТИ ПОЛИМЕРНЫХ РАСПЛАВОВ

Н.Ф. Фаткуллин¹, R. Kimmich²

¹ Казанский государственный университет, 420008 Казань

² Universität Ulm, 89069 Ulm, Germany

Взаимная непересекаемость полимерных цепей и малая сжимаемость полимерных расплавов приводят к согласованности перемещений сегментов макромолекул удаленных друг от друга на расстояния много большие размеров самих макромолекул. Как результат, возникают сильные молекулярно-массовые зависимости терминального времени релаксации $\tau_1 \propto N^{13/4}$ и коэффициента самодиффузии $D \propto N^{-9/4}$ полимерных расплавов.

Полимерные расплавы с достаточно большими молекулярными массами обладают механическими свойствами промежуточными между низкомолекулярными жидкостями и твердыми телами. При достаточно коротких временах $t \ll \tau_1$, где τ_1 – так называемое время терминальной релаксации, они проявляют почти упругий отклик на внешние воздействия подобно твердым телам, а при больших временах $t \gg \tau_1$ они текут подобно жидкостям. Такое поведение принято называть вязкоупругим.

Вообще говоря, свойство вязкоупругости присуще всем жидкостям. Однако в низкомолекулярных жидкостях время τ_1 имеет микроскопический порядок величины $\tau_1 \ll 10^{-10} \div 10^{-9}$ sec. В полимерных же жидкостях это время характеризуется сильной молекулярно-массовой зависимостью

$$\tau_1 = \tau_s N^{3.4}, \quad (1)$$

где τ_s – некоторое характерное время, называемое временем сегментальной релаксации, имеющее микроскопический порядок величины ($\tau_s \sim 10^{-10} \div 10^{-9}$ sec.), N – число сегментов Куна в макромолекуле, пропорциональное молекулярной массе макромолекулы.

Число сегментов Куна в макромолекуле может быть порядка 10^2 - 10^3 , и, как легко видеть из соотношения (1), терминальное время релаксации полимерных расплавов имеет макроскопический порядок величины. Другой важной характеристикой полимерных расплавов, тесно связанной с вязкоупругими свойствами, является сильная молекулярно-массовая зависимость коэффициентов самодиффузии макромолекул:

$$D = D_0 N^{-2.5}, \quad (2)$$

где $D_0 \sim b^2/\tau_s$ – так называемый сегментальный коэффициент диффузии, имеющий порядок величины характерный для низкомолекулярных жидкостей, b – длина сегмента Куна макромолекулы.

В настоящее время имеется целый ряд подходов, как феноменологических, так и микроскопических, для объяснения молекулярного механизма вязкоупругих свойств полимерных расплавов. Однако до сих пор имеется много нерешенных вопросов, связанных с вязкоупругими свойствами полимерных расплавов, свидетельствующих о неполноте нашего понимания самого явления, см. например [1-6].

Несмотря на существенную разницу этих подходов, все они исходят из положения, что вязкоупругость полимерных расплавов является следствием специфических взаимодействий макромолекул, удаленных друг от друга на расстояния порядка линейных размеров отдельной макромолекулы, например радиуса Флори $R_F = bN^{1/2}$. Две такие макромолекулы имеют большое число, порядка $N^{1/2}$, взаимных контактов. Вязкоупругость трактуется как следствие влияния непересекаемости двух различных макромолекул на их динамические свойства.

Как нам кажется, эта картина не полна. В настоящей заметке мы приведем качественные соображения и оценки, показывающие, что свойство непересекаемости макромолекул и малая сжимаемость полимерных расплавов влекут за собой динамические корреляции макромолекул, удаленных на расстояния несоизмеримо большие, чем радиус Флори.

Допустим, что за время $t \ll \tau_1$ некоторый сегмент пробной макромолекулы сместился на расстояние $r(t)$. Это расстояние много меньше, чем радиус Флори макромолекулы. На расстояния такого же порядка оказываются вынужденными когерентно сместиться соседние сегменты пробной макромолекулы из-за того, что химические связи, образующие макромолекулу, сохраняются в процессе тепловых движений. Эти сегменты распределены в объеме порядка $r^3(t)$. Различные макромолекулы двигаются так, что не могут пересекать друг друга. Поэтому, сместившись на расстояние порядка $r(t)$, пробная макромолекула увлекает за собой кусочек расплава объемом порядка $r^3(t)$.

Отметим, что ничего подобного не происходит в низкомолекулярных жидкостях, поскольку перемещение отдельной молекулы требует некоторой корреляции лишь в перемещении соседних молекул, расположенных на расстояниях порядка межмолекулярных расстояний. Вследствие этого окружающая молекулу среда легко ее обтекает, путем перемещения малого числа молекул окружения на микроскопические расстояния.

Итак, перемещение полимерного сегмента на расстояние $r(t) \ll R_F$ сопровождается перемещением примерно на это же расстояние материального элемента объема расплава порядка $r^3(t)$. Однако полимерные жидкости практически

несжимаемые, поэтому такое перемещение обсуждаемой части расплава вызовет перемещение и в других областях. Все эти перемещения должны быть такими, что в итоге приводят к перемещению объема порядка $r^3(t)$.

Рассмотрим сферу радиуса $R(t)$, в центре которой находится рассматриваемый сегмент. Обозначим через $l(t)$ типичное перемещение элементов расплава, индуцированное перемещением $r(t)$ обсуждаемого сегмента. В силу практической несжимаемости расплава должно выполняться соотношение:

$$R^2(t)l(t) \propto r^3(t). \quad (3)$$

Хорошо известно, что высокочастотные характеристики полимерных расплавов подобны аналогичным характеристикам низкомолекулярных жидкостей. Локальные смещения атомов на расстояния порядка межатомных расстояний $a_0 \sim 5\text{\AA}$ осуществляются сравнительно быстро. Поэтому, положив в соотношении (3) $l(t) \sim a_0$, мы получим оценку характерного линейного размера области полимерного расплава, перемещение атомов которого согласовано с перемещением сегмента пробной макромолекулы в момент времени t :

$$R(t) \propto [r^3(t)/a_0]^{1/2}. \quad (4)$$

Эта область содержит порядка

$$n(t) \propto \rho_m R(t)^3 = \rho_m [r^3(t)/a_0]^{3/2} \quad (5)$$

полимерных сегментов.

Итак, смещение сегмента пробной макромолекулы на расстояние порядка $r(t)$ индуцирует коррелированные перемещения порядка $n(t)$ сегментов окружающих макромолекул. Это будет происходить до тех пор, пока

$$r(t) \leq R_F = bN^{1/2}, \quad (6)$$

т. е. не превышает характерные линейные размеры макромолекул.

Если бы движение полимерного сегмента коррелировало лишь с ближайшими соседями, как в низкомолекулярных жидкостях, то мы имели бы дело с нормальной диффузией, и среднеквадратичное смещение было бы пропорционально времени t . В нашем же случае, пока выполняется соотношение (6), естественно ожидать:

$$r^2(t) \propto D_0 t / n(t). \quad (7)$$

Из соотношений (2), (5) и (7) находим:

$$r^2(t) \propto [b^3 a_0^{3/2} / \rho_m]^{4/13} \left(\frac{t}{\tau_s} \right)^{4/13}. \quad (8)$$

Мы видим, что пока выполняется соотношение (6), движение полимерных сегментов имеет характер аномальной диффузии с показателем экспоненты $4/13 = 0.307...$, что очень близко к имеющимся данным, полученным на основе компьютерных симуляций.

Максимальное время релаксации полимерной цепочки τ_1 можно оценить, приравняв правую часть соотношения (8) при $t = \tau_1$ квадрату радиуса Флори цепочки:

$$\left[b^2 a_0^{3/2} / \rho_m \right]^{4/13} \left(\frac{\tau_1}{\tau_s} \right)^{4/13} \square R_F^2 = b^2 N. \quad (9)$$

Отсюда находим:

$$\tau_1 \square \rho_m b^3 (b/a_0)^{3/2} \tau_s N^{13/4} \propto \tau_s N^{3.25}. \quad (10)$$

Сравнивая это соотношение с экспериментальными данными, т.е. соотношением (1), видим близость молекулярно-массовых зависимостей.

При временах $t > \tau_1$ макромолекулы смещаются на расстояния большие, чем радиус Флори, и большей частью обновляют своих соседей. Наступает диффузионный режим движения с коэффициентом самодиффузии, определяемым из соотношения:

$$D \square R_F^2 / \tau_1 \propto D_0 N^{-9/4} = D_0 N^{-2.25}. \quad (11)$$

Сравнивая с соотношением (2), легко видеть, что наша оценка (11) коэффициента самодиффузии макромолекул тоже находится в хорошем согласии с экспериментальными данными.

В заключение укажем на недавние эксперименты по ЯМР спин-решеточной релаксации в полимерных расплавах, помещенных в поры, размеры которых до десятка раз превышали радиусы Флори макромолекул [7]. Было замечено, что характер частотной зависимости времени спин-решеточной релаксации качественно меняется по сравнению с тем, что было в неограниченном расплаве даже на очень высоких частотах, соответствующих перемещениям сегментов на расстояния много меньшие размеров пор. Приведенные выше соображения находятся в качественном согласии с этими данными.

Авторы благодарят фонды РФФИ, CRDF и Volkswagen-Stiftung за финансовую поддержку исследований.

Литература

1. Готлиб Ю.Я., Даринский А.А., Светлов Ю.Е. Физическая кинетика макромолекул. Ленинград: Химия, Ленинградское отделение. 1986.

2. Гроссберг А.Ю., Хохлов А.Р. Статистическая физика макромолекул. М.:Наука, 1989.
3. de Gennes P.G. Scaling Concepts in Polymer Physics, Cornell Univ. Press, Ithaka, 1979.
4. Doi M. and Edwards S.F. (1986). The Theory of Polymer Dynamics, Oxford. Oxford Univ. Press, 1986.
5. Ferry J.D. Viscoelastic Properties of Polymers, 3rd edn. (1974) Wiley, New York
6. Kimmich R. and Fatkullin N., Polymer chain dynamics and NMR, Adv. Pol. Sci. 2004, 170, p.5.
7. Mattea C., Fatkullin N., Fischer E., Beginn U., Anoardo E., Kroutieva M. and Kimmich R., Appl. Magn. Reson, in press .

ON THE VISCOELASTICITY THEORY OF POLYMER MELTS

N.F. Fatkullin¹, R. Kimmich¹

¹ *Kazan State University, 420008 Kazan, Russia*

² *Universität Ulm, 89069 Ulm, Germany*

Mutual uncrossability of polymer chains and low compressibility of polymer melts give rise to dynamical correlations between polymer segments of different chains, separated by distances much larger than typical sizes of macromolecules. Due to this the terminal relaxation time $\tau_1 \propto N^{13/4}$ and self-diffusion coefficient $D \propto N^{-9/4}$ have the strong molecular-mass dependencies.

FEYNMAN-KAC PATH INTEGRALS AND EXCITED STATES OF QUANTUM SYSTEMS

N.G. Fazleev^{1,2}, J.L. Fry¹, and J.M. Rejcek¹

¹ *Department of Physics, Box 19059, University of Texas at Arlington,
Arlington, Texas 76019-0059, USA*

² *Department of Physics, Kazan State University, Kazan, 420008, Russia*

We use transformation properties of the irreducible representations of the symmetry group of the Hamiltonian and properties of a continuous path to define a “failure tree” procedure for finding eigenvalues of the Schrödinger equation using stochastic methods. The procedure is used to calculate energies of the lowest excited states of quantum systems possessing anti-symmetric nodal regions in configuration space with the Feynman-Kac path integral method. Within this method, the solution of the imaginary time Schrödinger equation is approximated by random walk simulations on a discrete grid constrained only by symmetry considerations of the Hamiltonian. The required symmetry constraints on random walk simulations are associated with a given irreducible representation of a subgroup of the symmetry group of the Hamiltonian and are found by identifying the eigenvalues for the irreducible representation corresponding to symmetric or antisymmetric eigenfunctions for each group operator. As a consequence, the sign problem for fermions is eliminated. The method provides exact eigenvalues of excited states in the limit of infinitesimal step size and infinite time. The numerical method is applied to compute the eigenvalues of the lowest excited states of the hydrogenic and helium atoms.

I. Introduction

The motivation for the Feynman-Kac path integral formulation comes from the difficulty of defining a measure for the real time Feynman path integral. Feynman’s path integral approach to quantum mechanics can be formally described by the expression

$$\left(e^{-iHt/\hbar}\psi\right)(\vec{R}_1) = \int_{\Omega(\vec{R}_2;\vec{R}_1)} e^{iA(\omega)/\hbar} \psi(\omega(t)) d\omega, \quad (1)$$

where H is the Hamiltonian operator, $\psi(\vec{R}_1)$ is the wave function at the initial time $t = 0$ and position $\omega(0) = \vec{R}_1$, $\Omega(\vec{R}_2;\vec{R}_1) = \{\omega(s) \mid 0 \leq s \leq t, \omega(0) = \vec{R}_1, \omega(t) = \vec{R}_2\}$ denotes the set of all paths starting at $\vec{R}_1$ and ending at point $\vec{R}_2$, $A(\omega)$ is the classical action of the path and $d\omega$ is a measure on $\Omega(\vec{R}_2;\vec{R}_1)$. The notation reads, the time evolution operator $e^{-iHt/\hbar}$ operating on an initial function ψ evaluated at some point $\vec{R}_1$

is equal to the sum over all paths ω in $\Omega(\vec{R}_2; \vec{R}_1)$, weighted by a function of the action per path and employing some measure $d\omega$. Unfortunately, the path spaces of interest are infinite-dimensional and no Lebesgue-type measure $d\omega$ exists for real $A(\omega)$. Exner [1] states a theorem asserting that the Feynman-type measures cannot exist because the exponential term in Eq. (1) is wildly oscillating unless $A(\omega)$ is purely imaginary. Therefore, the path integrals under consideration denoted by $\int d\omega$ are not integrals in the Lebesgue or Riemann sense. Several approaches [1] have been attempted in order to define meaning to Eq. (1). Most approaches try to bypass this difficulty by defining a suitable class of functions $\psi(\vec{R})$ whose behavior would be smooth enough in some sense to cancel the influence of the oscillations.

One approach to obtaining finite Feynman path integrals involves analytical continuation in time. Consider the Hamiltonian operator $H = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V$ and assume that the potential V is continuous. Instead of e^{-itH} , one may try to get a path integral expression for e^{-tH} . Eq. (1) becomes

$$(e^{-Ht}f)(\vec{R}_1) = \int_{\Omega(\vec{R}_2; \vec{R}_1)} \exp\left\{\frac{1}{2}\int_0^t \left(|\dot{\omega}(s)|^2 - V(\omega(s))\right) ds\right\} f(\omega) D\omega, \quad (2)$$

where $A(\omega) = \frac{1}{2}\int_0^t \left(|\dot{\omega}(s)|^2 - V(\omega(s))\right) ds$ is the action for the Brownian motion path ω and $D\omega$ is a probability measure on the space of all Brownian motion trajectories starting at $\omega(0) = \vec{R}_1$ and ending at $\omega(t) = \vec{R}_2$. The difference between Eq. (1) and Eq. (2) is that the Wiener integrals have a mathematically well-defined measure.

Kac applied Wiener measure to Feynman path integrals to obtain what is now known as the Feynman-Kac formula:

$$(e^{-Ht}\psi)(\vec{R}) = \int_{\Omega(\vec{R})} \exp\left(-\int_0^t V(\omega(\tau)) d\tau\right) \psi(\omega(t)) d\mu(\omega), \quad (3)$$

where V is the potential in the Hamiltonian operator $H = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V$, $\Omega(\vec{R})$ is the set of all continuous paths ω on the interval $[0, t]$ in N dimensional real space $\mathfrak{R}^N$ such that $\omega(0) = \vec{R}$, $\mu(\omega)$ denotes Wiener measure (i.e. a probability measure on the set of all possible trajectories of Brownian motion in $\mathfrak{R}^N$ initially started at position $\vec{R}$), and ψ is any function which is Lebesgue square integrable, denoted $\psi \in L^2(\mathfrak{R}^N)$. The notation $L^p(\mathfrak{R}^N)$ stands for the set of all functions $f(\vec{r})$ which are Lebesgue measurable on some family of Borel subsets $\mathcal{B}$ of $\mathfrak{R}^N$ and have the property that $\int_B |f|^p d^N r < \infty$ for

$1 \leq p \leq \infty$ and $B \in \mathfrak{B}$. A rigorous proof of the Feynman-Kac formula and limitations of its application are given by Reed and Simon [2].

The Feynman-Kac formula gives an expected value of a path integral with respect to Wiener measure. If every random path $\omega(t)$ initially begins at some position $\vec{r}_0 = \omega(0)$, the function ψ is defined to be a delta function, $\psi(\omega(0)) = \delta(\omega(0) - \vec{r}_0)$. Substituting this into Eq. (3) yields

$$\bar{S}(t, \vec{r}_0) \equiv E_{\vec{r}_0} \left[\exp \left(- \int_0^t V(\omega(\tau)) d\tau \right) \right], \quad (4)$$

where $E_{\vec{r}_0}(\cdot)$ is the expected value of the Wiener integral with $\vec{r}_0 = \omega(0)$ the initial position of a Wiener process (Brownian motion).

The Feynman-Kac path integral method was first applied in finding the ground state energy of a one-dimensional physical system by Donsker and Kac [3]. It has been generalized for dimensions $N > 1$ for a large class of potential functions [4] including those potentials with $|\vec{r}|^{-1}$ singularities (for example the Coulomb potential). The exact solution for the ground state eigenvalue may be written

$$\lambda_1 = \lim_{t \rightarrow \infty} \left(-\frac{1}{t} \ln [\bar{S}(t, \vec{r}_0)] \right) = \inf \left\{ \int_{\Omega_0} V(\vec{r}) \varphi^2(\vec{r}) d^N r + \frac{1}{2} \int_{\Omega_0} \langle \nabla \varphi(\vec{r}), \nabla \varphi(\vec{r}) \rangle d^N r \right\}, \quad (5)$$

where $\nabla = \left(\frac{\partial}{\partial r_1}, \frac{\partial}{\partial r_2}, \dots, \frac{\partial}{\partial r_N} \right)$ is the gradient and $\langle \cdot \rangle$ is the scalar product in some

region contained in an N-dimensional real configuration space, $\Omega_0 \subset \mathfrak{R}^N$.

The Feynman-Kac path integral method has been used in more recent literature [5,6] to calculate the ground state energies of several atomic and exactly solvable quantum systems. The solutions for the ground state eigenvalues were approximated by random walk simulations on a discrete grid, based on the Donsker-Varadhan invariance principle [7] for Brownian motion. The method provides exact ground state eigenvalues in the limit of infinitesimal step size and infinite time.

A desired extension of the method is application to excited states of quantum systems. For a given Hamiltonian H , which describes a quantum system, if additional constraints were added requiring random walk simulations on a discrete grid to remain confined in a configuration space region the bounds of which coincide with the zeroes of an excited eigenstate, called a nodal region, the Feynman-Kac method would converge to the eigenvalue of that eigenstate. However, for most quantum systems, one does not know where the eigenfunction changes from positive to negative. This is related to the sign problem in stochastic methods. A useful approximation is the fixed-node approximation, where a trial

function with known nodal regions is used to approximate the exact eigenfunction. If the trial function nodes exactly correspond to the true eigenfunction nodes, then the exact eigenvalue can be calculated. A survey of different stochastic methods used to solve the Schrödinger equation for many body systems is given in [8-10].

In this paper we show that for quantum systems possessing particular symmetries in configuration space, it is possible to use representation theory of finite groups and properties of the continuous path to develop constraints on the random walk in order to compute the lowest energy of a state that transforms according to a chosen irreducible representation of the invariant group of the Hamiltonian within the Feynman-Kac path integral method. These constraints are incorporated into a procedure called the “failure tree” method. In Section II we present precise definitions of a nodal region and a continuous path as well as several theorems related to properties of eigenstates associated with a nodal region. In Section III we introduce the “failure trees” and describe how they are implemented. In Section IV we present several theorems from representation theory of finite groups and use them to define the “failure trees”. In Section V we describe how symmetry considerations are applied in the creation of “failure trees” and present the results of numerical calculations for excited states of the hydrogenic and helium atoms. Conclusions are presented in Section VI.

II. Properties of bounded regions of configuration space

For further consideration, a few definitions and properties related to the continuity of a path in configuration space will be needed. Given two separate points $\vec{R}_1$ and $\vec{R}_2$ in N -dimensional space $\mathfrak{R}^N$, for every continuous path $P(\vec{R}_1, \vec{R}_2)$ connecting the points there exists at least one set of one dimensional continuous parametric functions $f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, t), f_2(\vec{R}_1, \vec{R}_2, t), \dots, f_N(\vec{R}_1, \vec{R}_2, t)$ Ω_n , with the parameter t , $[0 \leq t \leq T]$, so that the path can be represented by the set of points

$$P(\vec{R}_1, \vec{R}_2) \equiv \left\{ \vec{R} \in \mathfrak{R}^N \left| \begin{array}{ccc} f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, t) & f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, 0) & f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, T) \\ \vec{R} = f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, t) & \text{with } \vec{R} = f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, 0) \text{ and } \vec{R}_2 = f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, T) \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, t) & f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, 0) & f_1(\vec{R}_1, \vec{R}_2, T) \end{array} \right. \right\} \quad (6)$$

In general, there may be an infinite number of different continuous paths between $\vec{R}_1$ and $\vec{R}_2$.

Consider a physical system defined by a Hamiltonian $H = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V$ on a configuration space region $\Omega_0 \subseteq \mathbb{R}^N$, which has a boundary $\partial\Omega_0$ that defines the limits of the system. It has been shown by Ray [11] that there exists a set of eigenfunctions $\{\psi_n(\vec{R})\}$ on Ω_0 such that $H\psi_n(\vec{R}) = \lambda_n\psi_n(\vec{R})$ and $\psi_n(\vec{R}) = 0$ on $\vec{R} \in \partial\Omega_0$. A nodal region Ω_m is a connected sub-region $\Omega_m \subseteq \Omega_0$ with bound $\partial\Omega_m$ defined as the set of points $\vec{R}$, where $\psi_m(\vec{R}) = 0$, which are called the nodes of the eigenfunction. By connected it is meant that for every two separate points in the nodal region, $\vec{R}_1, \vec{R}_2 \in \Omega_m$, there exists at least one continuous path between them contained in the nodal region that does not contain any boundary point. This implies there are no internal nodal regions that divide Ω_m into smaller sub-regions. Given an eigenfunction $\psi_m(\vec{R})$, the entire open set Ω_0 can be decomposed into a countable set of disjoint connected nodal regions $\{\Omega_m(\vec{R}_i)\}$.

Some characteristics of nodal regions for fermion systems have been explored in [12-15]. A few properties of the eigenfunctions and their nodal regions are described by the following three theorems. Proofs of the theorems are given elsewhere [16-18].

Theorem 1. The ground state $\psi_1(\vec{R})$ and only the ground state of a quantum system described by the Hamiltonian H has no internal nodes.

Theorem 2. Application of the Feynman-Kac method to any nodal region consistent with an eigenfunction $\psi_m(\vec{R})$ of the Hamiltonian will produce the eigenvalue λ_m of that state.

Theorem 3. If any nodal region Ω_m of an eigenfunction $\psi_m(\vec{R})$ is entirely contained in any nodal region Ω_n of another eigenfunction $\psi_n(\vec{R})$, then the corresponding eigenvalue λ_m is greater than or equal to λ_n : $\Omega_m \subset \Omega_n \Rightarrow \lambda_m \geq \lambda_n$.

It follows from the properties described by theorems 1-3, that if one can confine a random walk to a closed bounded region in configuration space that coincides with the zeros of the m th excited state of the quantum system under consideration, the corresponding eigenvalue λ_m can be calculated using the Feynman-Kac method. Thus, the fundamental problem is to devise a random walk that starts and remains in this region throughout the entire walk. It will be shown below that this can be done for some physical systems by taking into consideration symmetry properties of the Hamiltonian in configuration space and properties of a continuous path.

III. Introduction of the “failure trees”

Let θ represent a configuration space operator such as rotation, permutation or inversion, which takes a $3N$ -dimensional position vector $\vec{R}_1 \equiv (x_1, y_1, z_1, x_2, \dots, z_N)$ and transforms it to another vector $\theta^{-1}\vec{R}_1 \equiv (x'_1, y'_1, z'_1, x'_2, \dots, z'_N)$. If a Hamiltonian remains invariant to θ , then it is said that the system possesses symmetry with respect to θ and this implies the operation commutes with the Hamiltonian, $[H, \theta] = 0$. For every operator θ that commutes with the Hamiltonian and for every eigenfunction $\psi_n(\vec{R})$ of H , it is also true that $H\theta\psi_n(\vec{R}) = \lambda_n\theta\psi_n(\vec{R})$. That is, $\theta\psi_n(\vec{R})$ is also an eigenfunction of H with the degenerate eigenvalue λ_n . If $\theta\psi_m(\vec{R}) = c_m\psi_m(\vec{R})$ and $c_m < 0$, and if $\psi_m(\vec{R})$ is continuous in the full configuration space Ω_0 containing $\vec{R}$ and $\theta^{-1}\vec{R}$, then there must be some position $\vec{R}'$ where $\psi_m(\vec{R}') = 0$. This implies that at least one node exists for continuous $\psi_m(\vec{R})$.

Define a nodal region $\Omega_m(\vec{R}_1)$ around a point $\vec{R}_1$, that belongs to the full configuration space Ω_0 as the largest connected open subregion of points $\{\vec{R}\}$ that can be reached from $\vec{R}_1$ such that $\vec{R} \in \Omega_m(\vec{R}_1)$ implies $\theta^{-1}\vec{R} \notin \Omega_m(\vec{R}_1)$. Configuration space is then divided into two disjoint subsets, $\Omega_m(\vec{R}_1)$ and $\Omega_0 - \Omega_m(\vec{R}_1)$ respectively, and every continuous path $P(\vec{R}, \theta^{-1}\vec{R})$ must cross a nodal surface. From the set of all possible continuous paths from a point $\vec{R}_1$ to $\vec{R}_2 \in \Omega_m(\vec{R}_1)$, every path that remains interior to the nodal region, denoted $P(\vec{R}_1, \vec{R}_2) \subset \Omega_m$, requires that every $\vec{R} \in P(\vec{R}_1, \vec{R}_2)$ implies $\theta^{-1}\vec{R} \notin P(\vec{R}_1, \vec{R}_2)$. All paths that meet this requirement are interior to the nodal region. All paths that do not meet this requirement contain a continuous subpath $P(\vec{R}, \theta^{-1}\vec{R})$ as part of the full path $P(\vec{R}_1, \vec{R}_2)$ that leaves the nodal region.

In general, the condition that a point $\theta^{-1}\vec{R}$ is not included in a path must be checked at each step in a random walk numerical simulation for each and every point $\vec{R}$ contained in the path. If any such point $\theta^{-1}\vec{R}$ is found, the path has left the nodal region and must be assigned a numerical weight of zero. Otherwise, the path is fully contained in the nodal region and provides a nonzero contribution to the Feynman-Kac path integral. For many Hamiltonians there are configuration space operators θ that possess symmetry relations that can be utilized along with continuity properties of a path to simplify the procedure of checking each step in a random walk simulation. The procedure used in this paper to check the condition that a point $\theta^{-1}\vec{R}$ is not included in a path is called the “failure tree” method and is described in the following paragraphs.

In order to determine whether a numerically simulated path remains interior to a nodal region we utilize the definition of a continuous path given above. According to Eq. (6) the existence of a subpath $P(\vec{R}, \theta^{-1} \vec{R})$ implies that it can be represented by at least one set of one-dimensional continuous parametric functions $\{f_i(\vec{R}, \theta^{-1} \vec{R}, t), i = 1, 2, 3 \dots N\}$, with the parameter t , $[0 \leq t \leq T]$. As the random walk path is traced out in a numerical simulation, its representation by all parametric functions $f_i(\vec{R}, \theta^{-1} \vec{R}, t)$ must be checked. When a single parametric function is found to represent the set of points of the simulated path $P(\vec{R}, \theta^{-1} \vec{R})$, the path is still interior to the nodal region because the other $N-1$ parametric functions do not represent the path. It is only necessary to assign zero contribution from the path when all N parametric functions have are shown to represent the simulated path. This process can be graphically represented using a “failure tree” as shown in Fig. 1.

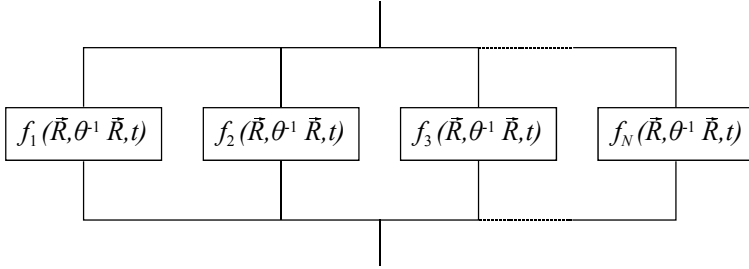


Fig. 1. Illustration of a failure tree

The figure can be understood as two points (top and bottom) connected by N parallel switches. The nonexistence of $f_i(\vec{R}, \theta^{-1} \vec{R}, t)$ is represented by the switch turned “on” and the existence of $f_i(\vec{R}, \theta^{-1} \vec{R}, t)$ by the switch turned “off”. Thus, finding that the j -th condition $f_j(\vec{R}, \theta^{-1} \vec{R}, t)$ does occur turns off one switch, yet the tree still connects the top to the bottom of the graph. Only after all switches are turned off is the connection broken. Likewise, if all $f_i(\vec{R}, \theta^{-1} \vec{R}, t)$ are found to represent the path, the necessary conditions have been demonstrated for the existence of a continuous path between two points $\vec{R}$ and $\theta^{-1} \vec{R}$.

IV. Application of group theory

Group theory considerations can be used to define the necessary symmetry constraints for construction of “failure trees” that allow selection of random walk paths that do not leave a configuration space region $\Omega_m(\vec{R})$. Consider a set of

coordinate transformations that commute with the Hamiltonian and form a group G with elements θ_j . We can define a projection operator $\mathcal{P}_{\Gamma_{lm}^q}$ for the irreducible representations of the group by

$$\mathcal{P}_{\Gamma_{lm}^q} = \frac{d_q}{O_G} \sum_{j=1}^{O_G} \Gamma_{lm}^{q*}(\theta_j) \theta_j, \quad (7)$$

where Γ_{lm}^q is the m th row and n th column of the q -th irreducible representation of the element θ_j , d_q is the dimension of the irreducible representation and O_G the order of the group. The projection operator can be used to project out eigenfunctions that possess the symmetry of a given irreducible representation Γ^q .

In the remainder of this paper we will consider one-dimensional irreducible representations, all of which possess properties described by the following theorems, which can be easily proved from the definition of the projection operator [19,20].

Theorem 4. All operators θ_j of the group G commute with every projection operator of all one-dimensional irreducible representations: $\left[\mathcal{P}_{\Gamma_{lm}^q}, \theta_j \right] = 0 \quad \forall \theta_j \in G$.

Theorem 5. Given an arbitrary function f , the q -th projection from a one-dimensional irreducible representation: $\left[\mathcal{P}_{\Gamma_{lm}^q}, \theta_j \right] = 0 \Rightarrow \theta_j g_{\Gamma_{lm}^q} = c_i g_{\Gamma_{lm}^q}$, where $g^q \neq 0$, is an eigenfunction of all operators θ_j of the group with eigenvalue $1/\Gamma^{q*}(\theta_i)$, $\theta_j g^q = \{1/\Gamma^{q*}(\theta_i)\} g^q$ for all θ_j in G and all q .

Theorem 6. Every one-dimensional irreducible representation Γ^q is uniquely defined by the eigenvalues $\{1/\Gamma^{q*}(\theta_i)\}$ of the elements $\{\theta_j\}$ of group G .

As shown in Theorem 6, since every nonzero projection of a function $g^q = \mathbf{P}^q f$ is an eigenfunction of each operator θ_j , there is a unique set of eigenvalues $\{1/\Gamma^{q*}(\theta_i)\}$ that describes each irreducible representation. The required symmetry properties associated with a given irreducible representation can be found by identifying the eigenvalues $\{1/\Gamma^{q*}(\theta_i)\}$ as being either ± 1 , corresponding to symmetric or antisymmetric eigenfunctions.

We note that every nonzero projection made on an eigenfunction of the Hamiltonian $g^q = \mathcal{P}^q \psi_m(\vec{R})$ remains an eigenfunction of the Hamiltonian. This is due to the fact that $[H, \theta_i] = 0$, which implies $\left[H, \sum b_i \theta_i \right] = 0$ for all constants b_i . Since the projection g^q must satisfy the symmetry properties of the irreducible representation Γ^q , g^q must possess all symmetry nodes associated with Γ^q . The

relevant symmetry property (antisymmetry) is identified by finding the subset of operators $\{\theta_j\}$ such that $\theta_j g^q = -g^q$.

Using this antisymmetry property for the q th irreducible representation, it is possible to construct “failure trees” in order to select random walk paths that do not violate the symmetry requirements of the projected eigenfunction $\mathcal{P}^q \psi_m(\vec{R})$. The only constraints imposed on a random walk are defined from the symmetry requirements for the irreducible representation. It follows from Theorem 2 that application of the Feynman-Kac method will produce the lowest energy of a state that transforms according to that irreducible representation.

V. Applications of the “failure tree” method

a. Hydrogenic p and d excited states

Consider the hydrogenic atom described as a single particle with elementary charge and mass M moving in a three-dimensional Coulomb potential defined as $V(\vec{r}) = -Zke^2/|\vec{r}|$, where Z is an integer, k is the Coulomb constant and e is the electron charge. Since the Weiner integral is usually numerically simulated in Cartesian coordinates, the Schrödinger equation, symmetry operations and the eigenfunctions are defined in terms of Cartesian coordinates. The Schrödinger equation for the system can be written as

$$\left[-\frac{1}{2} \nabla^2(\vec{r}) - \frac{Z}{|\vec{r}|} \right] \psi(\vec{r}) = \lambda \psi(\vec{r}), \quad (8)$$

with the unit of energy $U = \hbar^2 / Ms^2$ and $s = \hbar^2 / Mke^2$ the unit of length. The eigenfunctions are known exactly and can be expressed in terms of the cubic harmonics. By inspection of the Schrödinger equation, it can be seen that there are many symmetry operators, which leave the equation invariant. One is free at this point to choose operators that form a large number of possible subgroups, each possessing unique symmetry properties. The four configuration space operations $[E, \theta_2, \theta_3, \theta_4]$ defined by

$$\begin{aligned} E\psi(x, y, z) &= \psi(x, y, z) \\ \theta_2\psi(x, y, z) &= \psi(-x, y, z) \\ \theta_3\psi(x, y, z) &= \psi(x, -y, -z) \\ \theta_4\psi(x, y, z) &= \psi(-x, -y, -z) \end{aligned}$$

leave the Hamiltonian invariant and form a group $\mathcal{G}_1$. The multiplication table and irreducible representations for the group are shown in Table I.

Table I. *The multiplication table and the irreducible representations for the group G_1 (the hydrogenic atom)*

	E	θ_2	θ_3	θ_4		E	θ_2	θ_3	θ_4
E	E	θ_2	θ_3	θ_4	Γ^1	1	1	1	1
θ_2	θ_2	E	θ_4	θ_3	Γ^2	1	1	-1	-1
θ_3	θ_3	θ_4	E	θ_2	Γ^3	1	-1	1	-1
θ_4	θ_4	θ_3	θ_2	E	Γ^4	1	-1	-1	1

Given any subgroup of the Hamiltonian, its symmetry properties can be used to generate solutions that are either eigenfunctions of the Hamiltonian or linear combinations of degenerate eigenfunctions of the Hamiltonian. In the absence of specific knowledge of the eigenstates of the Hamiltonian, compatibility tables could be used to identify possible relationships with the irreducible representations of the full group. By using the projection operators defined in Eq. (7), it is possible to project out of the eigenfunctions of the Hamiltonian of the hydrogenic atom new eigenfunctions with the symmetry of the q -th irreducible representation Γ^q defined in Table I. The first few projected eigenfunctions for each irreducible representation are shown in Table II. Note that the hydrogenic spectrum has been sorted and classified by the irreducible representations of G_1 .

Table II. *Classification of the first few eigenfunctions for the group G_1 (the hydrogenic atom)*

	Γ^1	Γ^2	Γ^3	Γ^4
λ_1	$\Psi_{1s}(\vec{r})$			
λ_2	$\Psi_{2s}(\vec{r})$	$\Psi_{2p_y}(\vec{r})$ $\Psi_{2p_z}(\vec{r})$	$\Psi_{2p_x}(\vec{r})$	
λ_3	$\Psi_{3s}(\vec{r})$ $\Psi_{3d_{yz}}(\vec{r})$ $\Psi_{3d_{x^2-y^2}}(\vec{r})$ $\Psi_{3d_{3z^2-r^2}}(\vec{r})$	$\Psi_{3p_y}(\vec{r})$ $\Psi_{3p_z}(\vec{r})$	$\Psi_{3p_x}(\vec{r})$	$\Psi_{3d_{xy}}(\vec{r})$ $\Psi_{3d_{xz}}(\vec{r})$

If another subgroup were constructed using a different set of operators with the property $[H, \theta] = 0$, the entire spectrum could be reclassified by the new irreducible representations. For example, the subgroup G_2 defined by

$$\begin{aligned}
 E\psi(x, y, z) &= \psi(x, y, z) \\
 \theta_3\psi(x, y, z) &= \psi(x, -y, z) \\
 \theta_6\psi(x, y, z) &= \psi(x, y, -z) \\
 \theta_3\psi(x, y, z) &= \psi(x, -y, -z)
 \end{aligned}$$

also forms a group that is isomorphic to G_1 , but the hydrogenic spectrum would be reclassified based on the new irreducible representations. The particular choice of subgroup G_1 above allows the classification of the hydrogenic spectrum in such a way that p and d eigenstates belong to different irreducible representations.

The symmetry properties for each irreducible representation can be deduced by deriving the eigenvalue for every operator of the group. This will reveal the symmetric and antisymmetric properties of the projected wavefunctions $\mathcal{P}^i\psi_m(\vec{R})$ that transform like a particular irreducible representation Γ^q as stated in Theorem 6. The symmetry properties of the Γ^2 irreducible representation can be determined by using all four operators of the group as follows. Let $g_2(x, y) \equiv \mathcal{P}^2 f(x, y) = \frac{1}{4}[E + \theta_2 - \theta_3 - \theta_4]f(x, y)$. Then the symmetry properties of $g_2(x, y)$ are determined as

$$\begin{aligned}
 \theta_2 g_2(x, y) &= \theta_2 \frac{1}{4}[E + \theta_2 - \theta_3 - \theta_4]f(x, y) = \\
 &= \frac{1}{4}[\theta_2 + E - \theta_4 - \theta_3]f(x, y) = +g_2(x, y) \\
 \theta_3 g_2(x, y) &= \theta_3 \frac{1}{4}[E + \theta_2 - \theta_3 - \theta_4]f(x, y) = \\
 &= \frac{1}{4}[\theta_3 + \theta_4 - E - \theta_2]f(x, y) = -g_2(x, y) \\
 \theta_4 g_2(x, y) &= \theta_4 \frac{1}{4}[E + \theta_2 - \theta_3 - \theta_4]f(x, y) = \\
 &= \frac{1}{4}[\theta_4 + \theta_3 - \theta_2 - E]f(x, y) = -g_2(x, y)
 \end{aligned} \tag{9}$$

Eq. (9) shows that every function belonging to Γ^2 must be symmetric with respect to θ_2 and antisymmetric with respect to operators θ_3 and θ_4 . The antisymmetric conditions are used to define the particular symmetry constraints on a random walk associated with Γ^2 symmetry. The corresponding “failure tree” is shown in Fig. 2 along with the “failure trees” associated with Γ^3 and Γ^4 . The notation $\boxed{\theta_i}$ is used to denote all “failure tree” conditions associated with each operator θ_i as described in Section III.

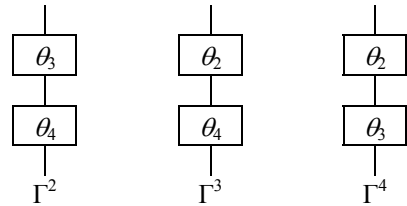


Fig. 2. The failure trees for group G_1

As each point $\vec{R}$ of a path is generated in a simulation, the particular antisymmetric conditions must be checked with all other points already generated in the path. If Γ^2 symmetry constraints are to be maintained, the whole path must be rejected when either $\theta_3^{-1}\vec{R}$ or $\theta_4^{-1}\vec{R}$ are also in the path. By this procedure, it is assured that every path that does not fail the symmetry constraints defined by Γ^2 belongs to a configuration space region with that symmetry. Using Eq. (5) and Theorem 2, of all possible configuration space regions consistent with the symmetry constraints, in the limit of large t , the Feynman-Kac method assures convergence to the lowest energy of the eigenstate with Γ^2 symmetry.

The task of checking each point $\vec{R}$ in a given path in order to find if $\theta^{-1}\vec{R}$ is also in the path can be significantly simplified for many configuration space operators using “failure tree” conditions as described in Section III above. The “failure tree” conditions associated with operators θ_2 , θ_3 and θ_4 defined in Table I are described as follows. For every continuous path between $\vec{R} = (x, y, z,)$ and $\theta_2^{-1}\vec{R} = (-x, y, z)$, it is necessary that there exist continuous functions $f_i(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, t)$ such that the following conditions hold true

$$\begin{aligned} f_1(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, t) \quad f_1(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, 0) = x \ \& \ f_1(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, T) = -x \\ f_2(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, t) \ni f_2(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, 0) = y \ \& \ f_2(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, T) = y \ . \\ f_3(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, t) \quad f_3(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, 0) = z \ \& \ f_3(\vec{R}, \theta_2^{-1}\vec{R}, T) = z \end{aligned}$$

For f_1 , this implies there is some $t = t'$ such that $x = f(\vec{R}, \theta^{-1}\vec{R}, t') = 0$.

This means that a necessary condition to move from $\vec{R}$ to $\theta^{-1}\vec{R}$ is for the path to pass through $x = 0$. This is also a sufficient condition for a path to fail the antisymmetric requirement associated with operator θ_2 since every point $\vec{R} = (0, y, z) = \theta_2^{-1}\vec{R}$. This antisymmetric requirement represents the yz plane at $x = 0$. Therefore, in order to assure that no continuous path between $\vec{R}$ and $\theta^{-1}\vec{R}$ is included in a simulation, it is both necessary and sufficient to require that every path does not cross the yz plane at $x = 0$. In order to keep this condition associated with operator θ_2 independent of where the path begins, the sign of the product of the parametric functions at the initial x_0 and the current x value, $xx_0 = f_1(\vec{R}_0, \vec{R}, t)f_1(\vec{R}_0, \vec{R}, 0)$, must be checked. Then, no matter what initial value is used, the condition $x = 0$ means the path has failed the

antisymmetric requirement associated with operator θ_2 . The resulting “failure tree” is illustrated in Fig. 3a.

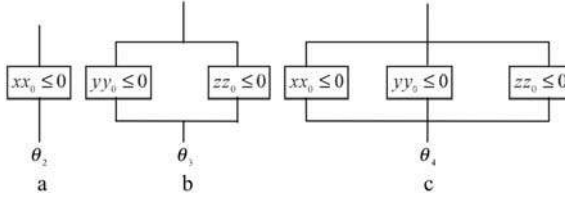


Fig. 3. The failure trees associated with operators θ_2 , θ_3 and θ_4

The “failure tree” conditions for operator θ_3 are described as follows. For every continuous path between $\vec{R}$ and $\theta_3^{-1}\vec{R} = (x, -y, -z)$, it is necessary that continuous functions $f_i(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, t)$ be generated such that

$$\begin{aligned} f_1(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, t) &= f_1(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, 0) = x \text{ \& } f_1(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, T) = x \\ f_2(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, t) &\ni f_2(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, 0) = y \text{ \& } f_2(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, T) = -y . \\ f_3(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, t) &= f_3(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, 0) = z \text{ \& } f_3(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, T) = -z \end{aligned}$$

For f_2 and f_3 , this implies there is some $t=t'$ and $t=t''$ such that $y = f_2(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, t') = 0$ and $z = f_3(\vec{R}, \theta_3^{-1}\vec{R}, t'') = 0$. Therefore a necessary condition for a path to fail the antisymmetric requirement associated with operator θ_3 is to include in the path any points $\vec{R} = (x, 0, z)$ and $\vec{R} = (x, y, 0)$. This represents a path crossing the xy plane at $z = 0$ and the xz plane at $y = 0$. The resulting “failure tree” is illustrated in Fig. 3b. This is also a sufficient condition for a path to fail the antisymmetric requirement of operator θ_3 . Since the reflection symmetry operators across the xy and xz planes also commute with the Hamiltonian for the hydrogenic system as shown in the group G_2 defined above, all eigenfunctions of the Hamiltonian that are antisymmetric to operator θ_3 must either be antisymmetric to θ_5 or θ_6 , or a degenerate eigenstate can be projected out that does have this same antisymmetric property. Failing the constraints defined for both θ_5 and θ_6 produces the same “failure tree” that is defined for θ_3 . Therefore the “failure tree” in Fig. 3b is both a necessary and sufficient condition to describe the antisymmetric requirements associated with operator θ_3 . Note that if the reflection operators θ_5 and θ_6 do not commute with a given Hamiltonian, the “failure tree” in Fig. 3b would only be a necessary condition for a path to remain consistent with θ_3 symmetry and further checks would be needed to determine if a path has failed the symmetry conditions for θ_3 . Using the same procedure as described above, the necessary and sufficient conditions associated with operator θ_4 were derived and are shown in Fig. 3c.

Using the requirements associated with these operators, the “failure trees” for the irreducible representations defined in Fig. 2 can be simplified because of the redundant symmetry properties associated with the operators. For example, letting $A = [xx_0 \leq 0]$, $B = [yy_0 \leq 0]$, $C = [zz_0 \leq 0]$ and using the property $[A \cup (A \cap B)] = A$, the Boolean logic for the Γ^2 “failure tree” reduces to $(B \cap C) \cup [A \cup (B \cap C)] = (B \cap C)$, as illustrated in Fig. 4.

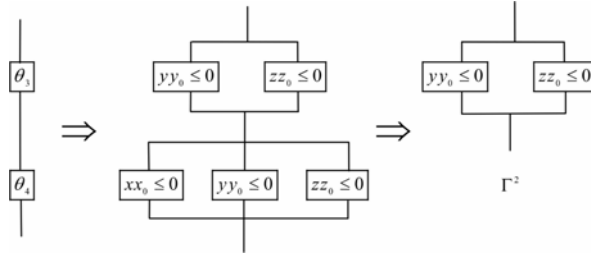


Fig. 4. The failure tree for Γ^2 symmetry

The resulting “failure tree” constraints associated with Γ^3 and Γ^4 irreducible representations are shown in Fig. 5. Note that any function belonging to Γ^1 must be symmetric with respect to every operator in the group. This implies every function belonging to Γ^1 is fully symmetric and therefore no “failure tree” will exist for the Γ^1 irreducible representation. This further implies that the ground state will belong to Γ^1 .

Consider a random walk numerical simulation to the solution of the Schrödinger equation of the hydrogenic atom Eq. (8), using the Feynman-Kac method as described in [6]. The calculation of the lowest energy belonging to Γ^2 (which is an excited state to the system and also degenerate to the eigenvalue corresponding to the lowest eigenstate belonging to Γ^3) is performed by random walk simulations of Eq. (8) with the imposed “failure tree” constraints defined in Fig. 5. No explicit knowledge of the nodal structure is used in this calculation. As noted earlier, the implementation of the “failure tree” constraints in the simulation will restrict the random walk to the regions where the wavefunction does not change sign.

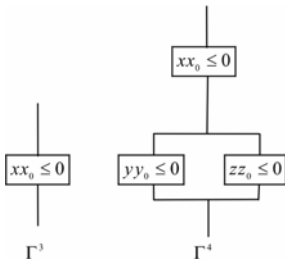


Fig. 5. The failure trees for Γ^3 and Γ^4 symmetry

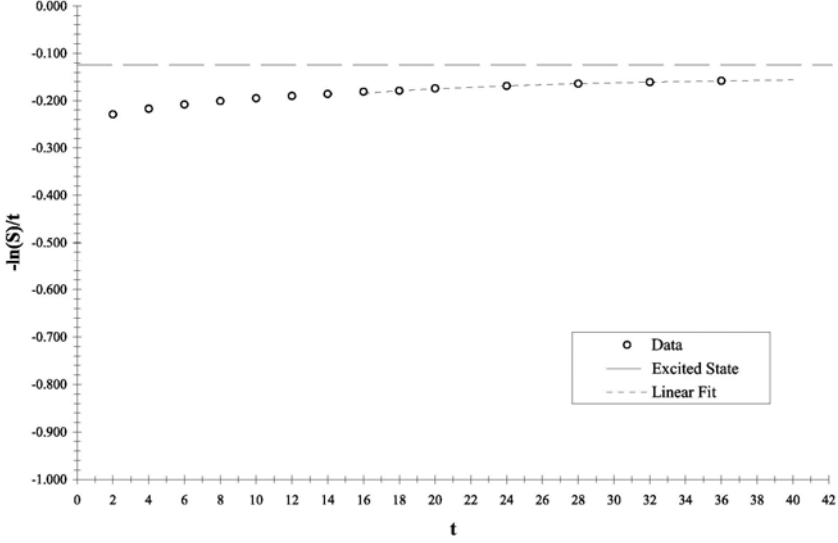


Fig. 6. Plot of $-\ln[\bar{S}(t, \vec{r}_0)]/t$ versus t for the hydrogen $2p_y$ excited state

Fig. 6 shows a plot of $-\ln[\bar{S}(t, \vec{r}_0)]/t$ versus t including 1σ error bars for the uncertainty, where $\bar{S}(t, \vec{r}_0)$ is the path integral simulation result as defined in [6]. The initial position for each random walk was set at $r_0 = \frac{3}{7}(\hat{i} - \hat{j} + \hat{k})$ and the step size $\Delta r = (\Delta x, \Delta y, \Delta z)$ is determined to be $\Delta x = \Delta y = \Delta z = s/\sqrt{n}$, where $n = 900$ and s and U are defined in Eq. (8). Note that the error bars are so small for this calculation that they do not appear. Five million paths were needed for this convergence. A least squares fit of the data starting at $t = 28$ to the equation

$$-\ln[\bar{S}(t, x_0)]/t = \lambda_1 - \ln[C_1]/t \quad (10)$$

is shown along with the exact eigenvalue. The least square fit yields the values $\ln[C_1] = -0.762(60)U$ and $\lambda_{2p_y} = -0.1377(12)U$, where the parentheses denote the uncertainty in the final two significant figures. This compares with the lowest eigenvalue $\lambda_{2p_y} = -(1/8)U = -0.125U$ for Γ^2 irreducible representation. The difference between the exact result and the numerical calculation is attributed to the finite step size and time used in the calculation. Decreasing the step size Δr and increasing t would result in closer convergence to the exact eigenvalue.

Fig. 7 shows the results for a random walk simulation implementing the Γ^4 “failure tree” in Fig. 5a. The figure shows a plot of $-\ln[\bar{S}(t, x_0)]/t$ versus t including 1σ error bars and a least square fit using Eq. (10) starting at $t = 4$ with $\ln[C_1] = 0.155608(66)Ut$ and $\lambda_{3d_{xy}} = -0.060610(50)U$. This compares with the lowest Γ^4 symmetry eigenvalue of $\lambda_{3d_{xy}} = -\frac{1}{18} \approx -0.055555 U$. Twenty five million paths were needed to reduce the uncertainty for larger values of t . As noted above, decreasing the step size Δr and increasing t would result in closer convergence to the exact eigenvalue. These results show that the random walk simulation, using the Feynman-Kac method with imposed “failure tree” constraints results in energy eigenvalues for excited states of the hydrogenic atom.

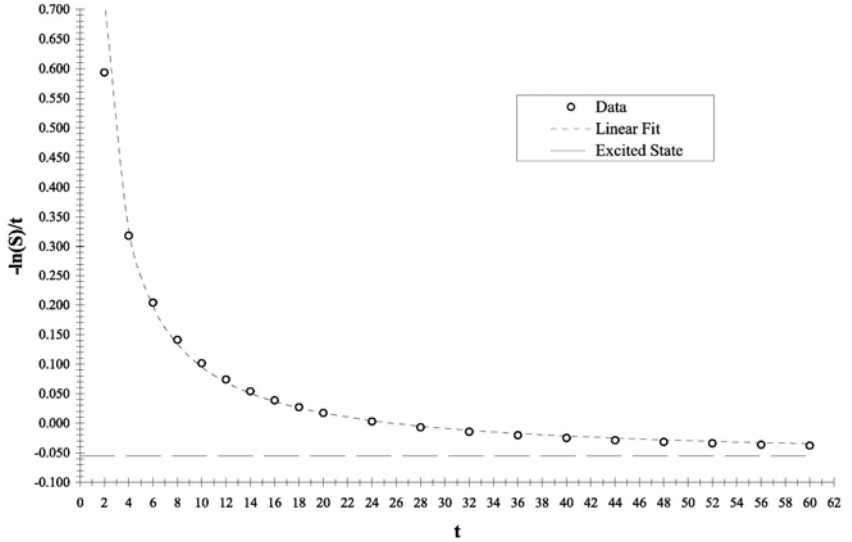


Fig. 7. Plot of $-\ln[\bar{S}(t, \vec{r}_0)]/t$ versus t for the hydrogen $3d_{xy}$ excited state

b. The helium $2^3P_{2,1,0}$ triplet excited state

Consider the helium atom described as two particles with elementary charge and mass M moving in a three-dimensional Coulomb potential defined as

$$V(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = -\frac{ke^2}{|\vec{r}_1|} - \frac{ke^2}{|\vec{r}_2|} + \frac{ke^2}{|\vec{r}_{12}|},$$

where k is the Coulomb constant and e is the electron charge. The Schrödinger equation for the system can be written as

$$\left[-\frac{1}{2} \nabla^2(\vec{r}_1, \vec{r}_2) - \frac{1}{|\vec{r}_1|} - \frac{1}{|\vec{r}_2|} - \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right] \psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \lambda \psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2), \quad (11)$$

with the unit of energy $U = \hbar^2 / Ms^2$ and $s = \hbar^2 / Mke^2$ the unit of length. One is free at this point to choose operators that form a large number of possible subgroups, each possessing unique symmetry properties. The two configuration space operations $[E, \theta_2]$ defined by

$$E\psi(x_1, y_1, z_1, x_2, y_2, z_2) = \psi(x_1, y_1, z_1, x_2, y_2, z_2)$$

$$\theta_2\psi(x_1, y_1, z_1, x_2, y_2, z_2) = \psi(-x_1, -y_1, -z_1, -x_2, -y_2, -z_2)$$

leave the Hamiltonian invariant and form a group G_1 . The multiplication table and irreducible representations for the group G_1 are shown in Table III. The first few projected eigenfunctions for each irreducible representation of G_1 are shown in Table IV. The helium spectrum has been sorted and classified by the irreducible representations of G_1 . The corresponding “failure tree” is shown in Fig. 8. If Γ^2 symmetry constraints are to be maintained, the whole path

must be rejected when either $\theta_2^{-1}\bar{R}$ is also in the path. By this procedure, it is assured that every path that does not fail the symmetry constraints defined by Γ^2 belongs to a configuration space region with that symmetry.

Table III. *The multiplication table and the irreducible representations for the group G_1 (the helium atom)*

	E	θ_2		E	θ_2
E	E	θ_2	Γ^1	1	1
θ_2	θ_2	E	Γ^2	1	-1

Table IV. *Classification of the first few eigenfunctions for the group G_1 (the helium atom)*

	Γ^1	Γ^2
λ_1	$\Psi_1 \ 1s_0(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$	
λ_2	$\Psi_2 \ 3s_1(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$	
λ_3	$\Psi_2 \ 1s_0(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$	
λ_4	$\Psi_2 \ 3p_{2,1,0}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$	
λ_5	$\Psi_2 \ 1p_1(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$	



Fig. 8. *The failure tree for Γ^2 symmetry (the helium atom)*

Consider a random walk numerical simulation to the solution of the Schrödinger equation of the helium atom Eq. (11), using the Feynman-Kac method with the imposed “failure tree” constraints defined by Γ^2 irreducible representation. The step size for this system is determined to be

$$\Delta x = \Delta y = \Delta z = \frac{0.529166 \times 10^{-10}}{\sqrt{n}} \text{ meters ,}$$

where $n = 900$. Fig. 9 shows a plot of $-\ln[\bar{S}(t, \vec{r}_0)]/t$ versus t including 1σ error bars for the uncertainty, where $\bar{S}(t, \vec{r}_1, \vec{r}_2)$ is the path integral simulation result as defined in [6]. Four million paths were needed for this convergence. A least squares fit of the data starting at $t=4$ to the equation $-\ln[\bar{S}(t, x_0)]/t = \lambda_1 - \ln[C_1]/t$ is shown along with the lowest variational result for the eigenvalue. The least square fit yields the values $\ln[C_1] = -0.278(135)Ut$ and $\lambda_{2^3P_{2,1,0}} = -2.139(29)U$. This compares with the variational result for the eigenvalue $\lambda_{2^3P_{2,1,0}} \approx -2.133U$ for Γ^2 irreducible representation [21]. These results confirm that the random walk numerical simulation to the solution of the Schrödinger equation of the helium atom, using the Feynman-Kac method with imposed “failure tree” constraints associated with Γ^2 irreducible representation results in the energy for the $2^3P_{2,1,0}$ triplet excited state of the helium atom.

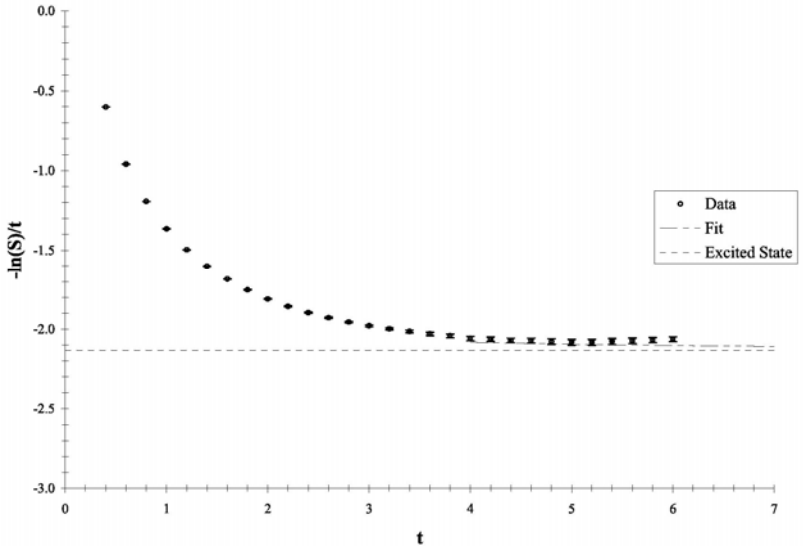


Fig. 9. Plot of $-\ln[\bar{S}(t, \vec{r}_0)]/t$ versus t for the helium $2^3P_{2,1,0}$ triplet excited state

VI. Conclusions

A numerical procedure, the “failure tree” method, for finding solutions of the Schrödinger equation using stochastic methods has been developed. The procedure is based on the use of transformation properties of the irreducible representations of the symmetry group of the Hamiltonian and properties of a continuous path. The “failure tree” method is used to calculate energies of the lowest excited states of quantum systems possessing anti-symmetric nodal regions in configuration space using the Feynman-Kac path integral method. Within the “failure tree” method the symmetry constraints on random walk simulations required to remain interior to a nodal region are obtained. These constraints are associated with a given irreducible representation of a symmetry group of the Hamiltonian and are found by identifying the eigenvalues for the irreducible representation corresponding to symmetric or antisymmetric eigenfunctions for each group operator. Since numerical simulations are reduced to a region of configuration space where the many particle wave function does not change sign, and the sign problem for fermions is never encountered. The method provides exact eigenvalues of excited states in the limit of infinitesimal step size and infinite time.

The “failure tree” method has been applied to compute the eigenvalues of the lowest excited states of the hydrogenic and helium atoms that transform as Γ^2 , Γ^4 and Γ^2 irreducible representations, respectively. A subgroup of configuration space operators has been identified and the “failure trees” have been then constructed based on the antisymmetric properties of each irreducible representation and properties of path continuity. Sufficiency conditions and Boolean logic have been used to simplify the “failure trees”.

The method described by the present work focuses on calculations of excited states with only statistical errors determined by the need to use finite step sizes and time for numerical simulations.

Acknowledgments

This work is dedicated to Boris I. Kochelaev on the occasion of his 70th birthday and supported in part by the Robert A. Welch Foundation.

References

1. P. Exner, *Open Quantum Systems and Feynman Integrals* (Reidel Pub. Co., Boston, 1985) Chapter 5, p. 217.
2. M. Reed and B. Simon, *Methods of Modern Mathematical Physics*, (Academic Press, New York, 1975), Vol. II, pp. 279-281.
3. M.D. Donsker and M. Kac, *Journal of Research National Bureau of Standards* **44**, (1950) 581.
4. A. Korzeniowski, *Statistics and Probability Letter* **8**, (1989) 229.

5. A. Korzeniowski, J.L. Fry, D. Orr and N.G. Fazleev, Phys. Rev. Lett. **69**, (1992) 893.
6. J.M. Rejcek, S. Datta, N. G. Fazleev, J.L. Fry and A. Korzeniowski, Computer Physics Communications **105**, (1997) 108.
7. B. Simon, *Functional Integration and Quantum Physics*, (Academic Press, New York, 1979).
8. J.B. Anderson, in *Reviews in Computational Chemistry*, Volume 13, Chapter 3, Edited by K. Lipkowitz and D. Boyd (Wiley-VCH, John Wiley and Sons, Inc., New York, 1999), pp. 133-182.
9. M. Caffarel, P. Claverie, C. Mijoule, J. Andzelm and D. Salahub, J. Chemical Physics **90**, (1989) 990.
10. W. Lester and B. Hammond, Annu. Rev. Phys. Chem. **41**, (1990) 283.
11. D. Ray, Transactions of the American Mathematical Society **77**, (1954) 299.
12. D.M. Ceperley and B. Alder, Science **231**, (1986) 555.
13. D.M. Ceperley, Journal of Statistical Physics **63**, (1991) 1237.
14. E. Lieb and D. Mattis, Phys. Rev. **125**, (1962) 164.
15. D.J. Klein and H. M. Picket, Journal of Chemical Physics **64**, (1976) 4811.
16. E.B. Wilson, Journal of Chemical Physics **63**, (1975) 4870.
17. L.D. Landau and E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics Non-Relativistic Theory*, (Pergamon Press Ltd., Oxford, 1977), p. 59.
18. M.A. Lavrent'ev and L.A. Lyusternik, *The Calculus of Variations*, (2nd edition, Moscow, 1950), Chapter IX.
20. E.P. Wigner, *Group Theory and its Application to Quantum Mechanics of Atomic Spectrum*, (Academic Press Inc., New York, 1959), p. 118.
21. Alexei M. Frolov, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **36**, 2911 (2003).

TRANSFORMATION OF MAGNETIC STATE UNDER THE INFLUENCE OF SUPERCONDUCTIVITY IN EPITAXIAL V/Pd_{1-x}Fe_x BILAYERS

I.A. Garifullin¹, N.N. Garif'yanov¹, D.A. Tikhonov¹,
K. Theis-Bröhl², K. Westerholt², and H. Zabel²

¹ *Zavoisky Physical-Technical Institute, Russian Academy of Sciences,
420029 Kazan, Russia*

² *Institut für Experimentalphysik/Festkörperphysik, Ruhr-Universität Bochum,
D-44780 Bochum, Germany*

We have performed ferromagnetic resonance (FMR) studies of epitaxial V/Pd_{1-x}Fe_x (001) bilayers with a V thickness of the order of 40 nm and with a Pd_{1-x}Fe_x thickness in the range from 0.8 nm to 4.4 nm. For a bilayer with a Pd_{1-x}Fe_x thickness of 1.2 nm and $x = 0.03$ the FMR measurements revealed a decrease of the effective magnetization $4\pi M_{\text{eff}}$ of the ferromagnetic layer below the superconducting transition temperature of vanadium. As a possible explanation for this decrease we suggest a spatial modulation of the ferromagnetic order in the Pd_{1-x}Fe_x layer due to modifications of the indirect exchange interaction of magnetic ions via conduction electrons in the superconducting state. A comparison with a recent theoretical investigation supports this possibility.

1. Introduction

The destructive influence of ferromagnetism on superconductivity in dilute magnetic alloys and superconductor/ferromagnet (S/F) multilayers is well known (see, e.g., reviews [1] and [2-3], respectively). This occurs because the strong internal exchange field in the ferromagnetic state tends to align the conduction electron spins whose spin susceptibility $\chi_s(0)$ is zero in the superconducting state. Apart from the influence of ferromagnetism on superconductivity one can expect the realization of the S/F proximity in the opposite direction, i.e., a transformation of the ferromagnetic state under the influence of superconductivity. In order to understand the origin of this effect one has to go back to the roots i.e. to the early results on the electron spin resonance in a superconductor doped with magnetic impurities [4-6]. The authors of Refs. [4-6] found the long-range contribution to the Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) interaction between localized moments which arises upon transition to the superconducting state. This contribution has an antiferromagnetic origin and is caused by the superconducting correlations in the Cooper condensate. Much earlier Anderson and Suhl [7] proposed that the additional homogeneous polarization over a large distance from a magnetic impurity should appear in a superconductor. Theoretically the dependence of this polarization on the distance in a superconductor in a “clean” limit has been

obtained in Refs. [6,8]. For a “dirty” limit Kochelaev *et al.* [9] showed that the homogeneous polarization of conduction electrons as well as the exchange interaction between the localized moments on the distance of the order of the superconducting coherence length (ζ_s) arises in a superconductor. It has the opposite sign relative to the homogeneous part of the polarization of conduction electrons induced by the exchange interaction between the localized moments and conduction electrons in a normal state. The polarization of conduction electrons in a superconductor with paramagnetic impurities integrated over the volume should vanish at $T=0$ K similarly to the situation for a superconductor without magnetic impurities. In spite of smallness of the “superconducting” polarization and the corresponding contribution to the RKKY interaction it should lead to the noticeable effects. In particular, this leads (see, e.g. [1]) to the helicoidal (or cryptoferromagnetic) magnetic ordering in some intermetallic compounds. As to a system consisting of a bulk superconductor with a thin ferromagnetic metallic film on its surface the possibility of the formation of a domain-like magnetic structure was considered theoretically by Buzdin and Bulaevskii [10]. They calculated the energy of two systems DS/S and F/S and concluded that the domain state (DS) will be the ground state for the magnetic layer thicknesses smaller than a certain critical thickness. The tendency for a reconstruction of the ferromagnetic order was observed experimentally in epitaxial Fe/Nb bilayers upon transition to the superconducting state [11]. This experimental result inspired further theoretical studies. Bergeret *et al.* [12] studied theoretically the possibility of a non-homogeneous magnetic order (cryptoferromagnetic state) due to superconductivity in heterostructures consisting of a bulk superconductor and a ferromagnetic thin layer. They derived a phase diagram which distinguishes the cryptoferromagnetic and ferromagnetic states and discussed the possibility of an experimental observation of the cryptoferromagnetic state in different materials. In particular, they concluded that because of the large magnetic stiffness constant and strong internal exchange field in pure iron the cryptoferromagnetic state is hardly possible in the Fe/Nb structure. Thus, it may be concluded that the tendency for a reconstruction of the ferromagnetic order in the iron layer observed experimentally in the Fe/Nb films [11], might be caused by discontinuous Fe layers in the thickness range where this effect was observed. Estimates performed by Bergeret *et al.* [12] show that the transition from the ferromagnetic to the cryptoferromagnetic state should be observable, if the exchange field and the magnetic stiffness constant would be an order of magnitude smaller than in pure Fe.

As a possible system for the experimental observation of the cryptoferromagnetic state in S/F multilayers the V/Pd_{1-x}Fe_x system can be chosen because of its low (at $x < 0.1$) and tunable Curie temperature. Ferromagnetic

resonance (FMR) measurements of bulk single crystals of $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ [13] suggest that these alloys are convenient systems for FMR studies because of their narrow resonance lines. In addition, it is well known (see, e.g., Ref. 14) that at any Fe concentration $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ alloys order ferromagnetically.

In this article we present our results on FMR measurements for $\text{V}/\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ single crystalline epitaxial bilayers. We show an example where the saturation magnetization determined from the FMR spectra decreases with lowering the temperature below the superconducting transition temperature T_C .

The paper is organized as follows: in Section 2 we provide a brief outline of the sample preparation and their X-ray characterization. Then we describe the superconducting properties of the $\text{V}/\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ bilayers as well as the electrical resistivity and the magnetization data. The FMR measurements are presented in Section 3, followed by a discussion of all the data in Section 4. The main results are summarized in Section 5.

2. Sample Preparation and Characterization

2.1. Sample Preparation

The $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x/\text{V}$ and $\text{V}/\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ bilayers were grown on MgO (001) substrates in a molecular beam epitaxy system (base pressure $\sim 5 \cdot 10^{-11}$ mbar). During the evaporation the background pressure was below 10^{-9} mbar. The MgO (001) substrates were annealed in the growth chamber at 1000 °C for 0.5 h prior to the evaporation in order to desorb impurities and to create a well ordered surface. Then the substrates were cooled to the desired temperature.

For the $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x/\text{V}/\text{MgO}$ (001) samples (samples 1-4 in Table I) the substrate temperature during the evaporation of the first V layer was 550° C. The evaporation rates of 0.01 nm/s were found to be optimal for the growth of high quality single crystalline V (001) films. $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ (001) films were prepared using two sources. Fe was evaporated from an effusion cell providing a flux of high stability, while Pd was evaporated by an electron beam gun. The substrate temperature during the preparation of the $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ layer was 200°C. The deposition rate of Pd was 0.027 nm/s and the Fe deposition rate varied between 0.0027 nm/s and 0.0009 nm/s.

For the $\text{V}/\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x/\text{Pd}/\text{MgO}$ (001) samples (samples 5 and 6) a buffer Pd (001) layer of about 100 nm was grown on MgO . The substrate temperature during the preparation of the Pd buffer layer was 450° C for the sample 5, and 400° C for the sample 6. The substrate temperature during the evaporation of the $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ (001) layer was 450° C and 400° C for the samples 5 and 6, respectively. The V layer was deposited using a substrate temperature of 300° C and the evaporation rate given above. In both cases the bilayers (except the sample 1) were covered by a protective layer of Pd with a thickness of a few nanometers. The substrate temperature during the growth of the protective layer was 200° C.

Table I. Experimental parameters of the studied samples

Sample	d_V (nm)	$d_{Pd} + d_{PdFe}$ (nm) (X-ray)	T_{Curie} (K)	d_{PdFe} (nm) (SQUID)	RRR	T_C (K)	$4\pi M_{eff}(30K)$ (kG)	K_1/M (Oe)
1	37.2	4.4	250	4.4	4.7	4.0	3.9	15.8
2	40.0	6.2	100	1.2	5.0	4.2	2.6	65.0
3	39.3	6.2	100	3.0	4.0	3.8	1.7	80.0
4	47	6.8	90	0.8	4.6	4.0	-	-
5	41.0	103	120	0.9	4.0	3.7	-	-
6	37.0	101	100	1.0	4.5	3.1	1.8	72.0

Given are the thickness of the V layer d_V and of the Pd and Pd_{1-x}Fe_x layers $d_{Pd} + d_{PdFe}$ obtained from the fit of the small angle reflectivity scans, the Curie temperature T_{Curie} and the thickness of the magnetic Pd_{1-x}Fe_x layer obtained from the SQUID magnetization measurements, residual resistivity ratio RRR , the superconducting transition temperature T_C , $4\pi M_{eff}$ and K_1/M values obtained from FMR measurements.

The growth rates were measured by a quartz-crystal monitor. The final thickness of the Pd_{1-x}Fe_x layer was determined by the evaporation time. The quality of the substrate and of each layer was always controlled by in-situ RHEED characterization to ensure a high quality growth of our samples. Each sample was prepared separately, but with identical growth conditions. The sample holder was rotated during the deposition to ensure a homogeneous film thickness.

Six samples with the experimental parameters summarized in Table I have been investigated by FMR.

2.2. X-ray Characterization

The intensity of specularly reflected X-rays at small angles provides information on the average electron density profile of the material studied in the direction along the surface normal. X-ray reflectivity measurements were performed *ex situ* using a 1.5 kW X-ray generator with a Mo anode ($\lambda = 0.709$ nm) and a Si (111) monochromator. The reflectivity scans showed well resolved oscillations. Fits of these scans gave an interface roughness of less than 4 Å, indicating the high interfacial quality of our samples. The film thicknesses, as obtained from the fits to the X-ray data are given in Table I. The thicknesses d_{Pd} of the top Pd layer in the case of Pd/Pd_{1-x}Fe_x/V/MgO samples and of the Pd buffer layer in case of V/Pd_{1-x}Fe_x/Pd/MgO samples are shown in Table I together with d_{Pd-Fe} as $d_{Pd} + d_{Pd-Fe}$.

A typical radial Bragg scans covering the angle range of the V (002) and $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ (002) peaks for the sample 2 with $d_V = 40$ nm and $d_{\text{Pd}} + d_{\text{Pd-Fe}} = 6.2$ nm reveal the (001) texture of both, the V layer and $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ layer.

2.3. Superconducting Transition Temperature

The superconducting transition temperature T_C was measured resistively using a standard four-terminal configuration with the current and voltage leads attached to the samples with the silver paint. T_C was defined as the midpoint of the superconducting transition. The T_C values are presented in Table I. For all samples the superconducting transition was very sharp with a transition width of the order of 0.1 K.

2.4. Electrical Resistivity

The residual resistivity ratio $RRR = R(300 \text{ K})/R(T_C)$ for the samples listed in Table I varies between 4 and 5. The corresponding residual resistivity values (from 4.6 to 6.1 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$) allow to estimate the electron mean-free path l_S for V using the Pippard relations [15]

$$\sigma = e^2 S \langle l_S \rangle / 12\pi^3 \hbar \quad \gamma = k_B^2 S / 12\pi \hbar \langle v_F \rangle \quad (1)$$

where σ denotes the electrical conductivity, γ the electronic specific heat coefficient, v_F the Fermi velocity of the conduction electrons, and l_S the mean-free path of conduction electrons. S is the Fermi surface area and the brackets indicate a mean average over the Fermi surface. Combining relations (1), one obtains

$$\rho l_S = (\pi k_B / e)^2 = (1 / v_F \gamma). \quad (2)$$

This relation permits an estimate of l_S from the low temperature resistivity ρ and the coefficient of the electronic specific heat γ . For V using $\gamma = 9$ mJ/mole K^2 and $v_F = 3 \cdot 10^7$ cm/s [16], we find $\rho l_S = 2.46 \cdot 10^{-6}$ $\mu\Omega\text{cm}^2$. This gives l_S -values between 4 and 5 nm.

2.5. Magnetization

Magnetization measurements using a SQUID magnetometer were performed with the film surface parallel to the direction of the magnetic field. For the precise determination of the ferromagnetic magnetization the correction of the substrate contribution to the magnetic moment of the samples is very important. The measurements of the temperature dependence of the magnetization of the MgO substrates used in the present study showed that at temperatures below 4 K the magnetic susceptibility of the substrates starts to increase strongly.

The measurements of the temperature dependence of the magnetization have been performed at a small magnetic field $H = 10$ Oe for all samples. The temperature dependencies of the magnetization in the ferromagnetic state after subtraction the substrate contribution are shown in Fig. 1 for two samples. They

are typical for bulk Pd_{1-x}Fe_x alloys (see, e.g., Ref. 17) The values obtained for the ferromagnetic Curie temperature T_{Curie} are presented in Table I. These values of T_{Curie} allows us to estimate the Fe concentration in Pd_{1-x}Fe_x alloy layers of our samples using the data for $T_{\text{Curie}} = f(x)$ from the review by Nieuwehuys [14]. Values of x determined in such a way lie between 0.03 and 0.1. Magnetization values corresponding to these concentrations, give the ferromagnetic layer thickness $d_{\text{Pd-Fe}}$ from our SQUID magnetization data. These values are also shown in Table I. The difference observed between the film thicknesses determined by X-rays and the magnetization measurements are due to the fact that for X-rays there is basically no electron density contrast between Pd and Pd_{1-x}Fe_x. Therefore with X-ray reflectivity measurements the sum of both layer thicknesses is determined.

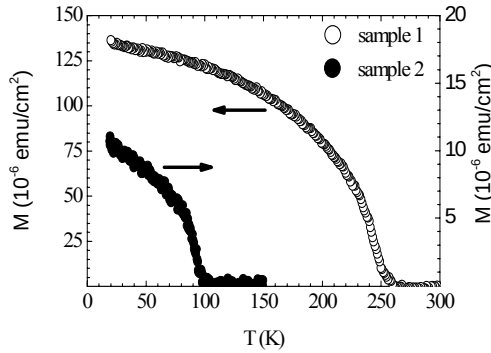


Fig. 1. Saturation magnetization per unit surface for the samples 1 and 2 vs temperature measured by SQUID magnetometer in the magnetic field $H = 10$ Oe parallel to the film plane

3. FMR Results and Analysis

Ferromagnetic resonance (FMR) experiments were carried out at 9.4 GHz in the temperature range from 1.6 K to 250 K using the ESR spectrometer B-ER 418^S (Bruker AG). In the normal state of the samples ($T > 4.2$ K) the FMR signals were observed for four of our samples: 1, 2, 3 and 6; for other two samples the resonance lines were not found. The angular dependence of the spectra was studied in the in-plane geometry, i.e. with both the dc magnetic field and the high frequency field lying in the film plane. The (001) surface of our thin films contains two principal magnetic axes of the bulk Pd_{1-x}Fe_x crystal ([100] and [110] axes). The observed angular dependence of the resonance exhibits a four-fold anisotropy typical for cubic crystals in the (001)-plane. As an example the angular dependence of the resonance field H_0 of the FMR signal for the samples 1 and 2 is shown in Fig. 2.

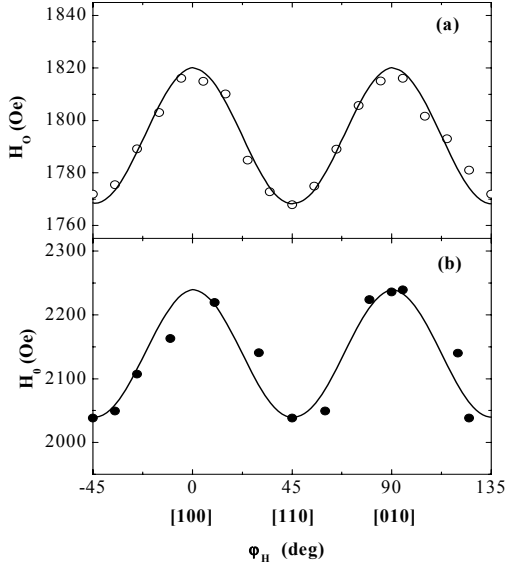


Fig. 2. In-plane angular dependencies of the resonance field H_0 for the sample 1 (a) and the sample 2 (b) at $T = 30$ K. The solid lines are the calculated resonance field values with parameters: $K_1/M = 15.8$ Oe, $4\pi M_{\text{eff}} = 3.9$ kG (for the sample 1) and $K_1/M = 65$ Oe, $4\pi M_{\text{eff}} = 2.6$ kG (for the sample 2)

A qualitatively similar behavior of H_0 was observed for the samples 3 and 6 as well. One can see from Fig. 2 that the [110] axis is the magnetically easy axis for our samples. In the superconducting state we were able to study the behavior of the FMR line parameters for the samples 1 and 2 only. This is due to a drastic increase of the intensity of the electron paramagnetic resonance of non-controlled paramagnetic impurities in the MgO substrate at temperatures below 4 K. This background prevented the observation of the FMR signal from $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ layers for the samples 3 and 6 in the superconducting state. Examples of FMR lines of the sample 2 in the normal and superconducting state after subtraction of the background signal are shown in Fig. 3 for the dc magnetic field along the magnetically easy axis.

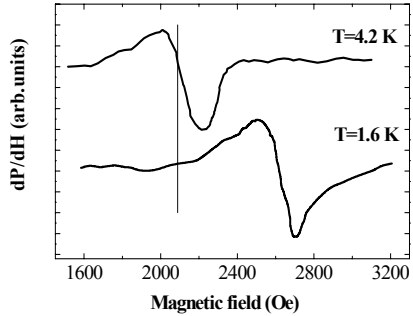


Fig. 3. FMR spectra for the sample 2 at $T = 4.2$ K (normal state) and 1.6 K (superconducting state) with dc magnetic field along the [110] axis of the $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ layer

The FMR results are analyzed using a coordinate system in which the magnetization $\mathbf{M}$ of the Pd_{1-x}Fe_x layer makes an angle θ with respect to the film normal (z direction) and an angle φ with respect to the x axis in the film plane (xy plane). The external magnetic field H is applied at an angle θ_H with respect to the film normal and at an angle φ_H with respect to the x axis. We define the x axis to be parallel to the $[100]$ axis of the Pd_{1-x}Fe_x layer. In our experiments θ_H was equal to $\pi/2$.

In general, thin films of materials with a cubic structure grown along the $[001]$ crystallographic axis have a tetragonal symmetry as a result of the in-plane strain due to epitaxial mismatch. This leads to the corresponding out-of plane Poisson distortion. Therefore, the contribution to the free energy due to the crystal anisotropy should contain the four-fold in-plane anisotropy constants, which differ from the fourth-order constant for the direction perpendicular to the film plane. In addition, a non-zero second-order uniaxial anisotropy term appears, due to the vertical lattice distortion and the broken symmetry of the crystal field acting on the interface atomic layer. The corresponding energy term has the form $F_u = -K_u \cos^2 \vartheta$. Since our experiments were performed in the in-plane geometry only, we will use the crystal anisotropy energy for cubic instead of tetragonal symmetry. Uniaxial perpendicular anisotropy and the contribution of the dipolar interaction (demagnetizing field $4\pi M$) enter the free energy of a system in an additive way, and therefore one can introduce an effective demagnetizing field

$$4\pi M_{\text{eff}} = 4\pi M - \frac{2K_u}{M}, \quad (3)$$

in order to account for the second-order perpendicular uniaxial anisotropy. Thus the total magnetic free energy density function appropriate for a (001) -oriented film is written in the form:

$$F = -MH \sin \vartheta \cos(\varphi - \varphi_H) + 2\pi M_{\text{eff}}^2 \cos^2 \vartheta + \frac{1}{4} K_1 (\sin^2 2\vartheta + \sin^4 \vartheta \sin^2 \varphi). \quad (4)$$

Here K_1 is the fourth-order cubic anisotropy constant.

The equilibrium position of $\mathbf{M}$ is given by the zeros of the first angle derivatives of F . In our experimental situation the out-of plane equilibrium angle is $\vartheta_0 = \pi/2$, and the in-plane equilibrium angle φ_0 is given by the solution of equation

$$H \sin(\varphi_0 - \varphi_H) = -\frac{K_1}{2M} \sin(4\varphi_0). \quad (5)$$

Using the general ferromagnetic resonance condition [19]

$$\left(\frac{\omega}{\gamma_0} \right)^2 = \frac{1}{(M \sin \theta)^2} \left[\frac{\partial^2 F}{\partial \vartheta^2} \frac{\partial^2 F}{\partial \varphi^2} - \left(\frac{\partial^2 F}{\partial \vartheta \partial \varphi} \right)^2 \right], \quad (6)$$

we obtain:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma_0}\right)^2 = \left[H \cos(\varphi_0 - \varphi_H) + \frac{2K_1}{M} \cos(4\varphi_0) \right] \times \left[H \cos(\varphi_0 - \varphi_H) + 4\pi M_{\text{eff}} + \frac{K_1}{2M} (3 + \cos(4\varphi_0)) \right]. \quad (7)$$

Here $\gamma_0 = g\mu_B/\hbar$ and g is the spectroscopic g -value. The expression (7) together with the condition for equilibrium (5) determines the resonance field position H_0 as a function of the angle φ_H , of the effective magnetization $4\pi M_{\text{eff}}$, and of the anisotropy constant K_1 .

We analyzed numerically the influence of all parameters in Eqs. (5) and (7) on the angular dependencies of the resonance field and obtained the following features: The increase of the $4\pi M_{\text{eff}}$ value leads to a total shift of the resonance field to lower values. The increase of K_1/M leads to an increase of the amplitude of variation of $H_0(\varphi_H)$.

To fit the angular dependencies of the resonance field $H_0(\varphi_H)$, we used Eqs. (5) and (7). Typical results with $g = 2.09$ are shown in Fig. 2. They are in a good agreement with our experimental data. These fits gave us K_1 and $4\pi M_{\text{eff}}$ values.

In order to determine the temperature dependence $4\pi M_{\text{eff}}(T)$, we used the temperature dependence of the resonance field measured with the dc magnetic field along the magnetically easy [110] axis of the $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ layer. Using Eqs. (5) and (7) at $\varphi_H = \pi/4$ from the temperature dependence of H_0 , we obtain the temperature dependencies of $4\pi M_{\text{eff}}$ for the samples 1 and 2 in a wide temperature range as shown in Fig. 4.

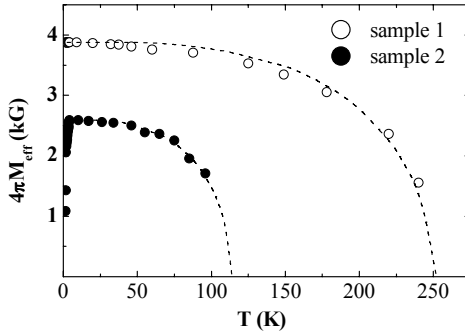


Fig. 4. $4\pi M_{\text{eff}}$ vs temperature for the samples 1 and 2 as revealed by FMR measurements. Dashed lines are the theoretical curves for $S = 1/2$ from the molecular field theory

Our study of the resonance field at fixed φ_H -value for the sample 2 clearly reveals a shift of the resonance field to higher values when decreasing the temperature below the superconducting transition temperature T_C (see Fig. 3). The latter fact definitely shows that the observed temperature dependence of H_0 at an orientation of the dc magnetic field along easy axis is caused by a decrease of the effective magnetization $4\pi M_{\text{eff}}$. The low temperature part of $4\pi M_{\text{eff}}(T)$ derived from that of H_0 is shown in Fig. 5. For comparison we also show the data obtained for the sample 1, where such behavior is not observed. Here we use the low temperature values of K_1/M and assume that they do not change noticeably in the temperature range from 10 K to 1.6 K.

4. Discussion

The most interesting result of the present study is the decrease of the effective magnetization $4\pi M_{\text{eff}}$ below the superconducting transition for the sample 2 (Fig. 5). At the same time $4\pi M_{\text{eff}}$ for the sample 1 does not change in this temperature region. In accordance with expression (3), a decrease of $4\pi M_{\text{eff}}$ can be caused by a decrease of the saturation magnetization M or by an increase of the perpendicular uniaxial anisotropy constant K_u . One can expect that the uniaxial anisotropy, which appears usually due to the broken symmetry of crystal field acting on the interface atomic layer, is proportional to the reciprocal thickness of the ferromagnetic layer. Comparison of the values of $4\pi M_{\text{eff}}$ for the samples 3 and 6 with nearly the same Fe content (according to the same values of T_{Curie}) but different thicknesses indicates that the second-order perpendicular uniaxial anisotropy is negligible in the thickness range studied here. Thus we have to conclude that the decrease of $4\pi M_{\text{eff}}$ is caused by a decrease of the saturation magnetization M .

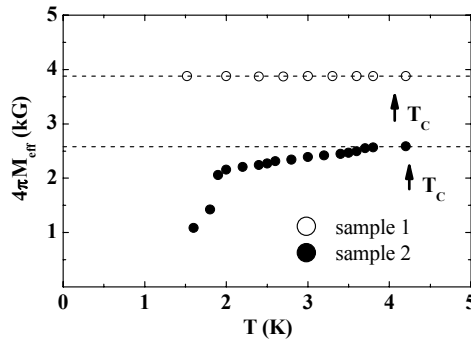


Fig. 5 Low temperature parts of $4\pi M_{\text{eff}}$ for the samples 1 and 2. The arrows show the T_C values at the resonance field H_0

We believe that a decrease of the saturation magnetization below T_C , which is observed for the sample 2, is caused by a transformation of the homogeneous ferromagnetic order in the Pd_{1-x}Fe_x magnetic layer due to the proximity effect with the

superconducting layer. It is well known (see, e.g., [2]) that the superconducting order parameter is strongly suppressed near the S/F interface. This is due to a penetration of the Cooper pairs into the ferromagnet where they are subjected to the strong exchange field. This leads to a T_C -suppression. The destructive influence of the exchange field on the superconductivity can considerably be weakened, if a domain structure on a length scale smaller than the superconducting coherence length ξ_S appears in the ferromagnetic layer, because then the exchange field would be effectively cancelled over the dimension of the Cooper pairs [7]. As it was mentioned in Introduction, a possible non-homogeneous magnetic order in a system consisting of a bulk superconductor with a thin ferromagnetic metallic film on its surface was considered by Buzdin and Bulaevskii [10] for the first time. They obtained that the domain state will be the ground state for a magnetic layer thickness

$$d_M^{crit} \leq \left(\frac{T_C^2}{T_{Curie} h} l_S \xi_0^{1/2} \right)^{2/3} \quad (8)$$

where h is the exchange field acting on the conduction electrons in the ferromagnetic layer and ξ_0 is the superconducting coherence length of the pure material ($\xi_S = 0.85\sqrt{\xi_0 l_S}$). For the sample 2 we have $T_C = 4.2$ K, $T_{Curie} = 100$ K, $l_S \sim 5$ nm, and $\xi_0 = 70$ nm. From the Curie temperature we estimate the Fe concentration in the $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ layer as 3 at.% in accordance with Ref. 14. This gives $h \sim 100$ K and $d_M^{crit} \sim 0.2$ nm. Since for our sample $d_{\text{Pd-Fe}} = 1.2$ nm, this estimate suggests that in our case the decrease of the magnetization cannot be due to cryptoferrromagnetism. On the other hand, recently Bergeret *et al.* [12] criticized the assumptions taken in Ref. 10 and concluded that these results can hardly be used for quantitative estimates. They presented a microscopic derivation of the phase diagram valid for realistic parameters of the problem involved. They considered a cryptoferrromagnetic state i.e. a state in which a magnetic moment rotates in space and concluded that in the absence of a strong anisotropy this state is more favorable than the domain structure of Ref. 10. Bergeret *et al.* [12] determined the phase diagram in the vicinity of the superconducting transition for two variables:

$$a = \frac{h d_M}{\eta} \sqrt{\frac{2}{D_S T_C}}, \quad (9)$$

which takes into account the exchange splitting h of conduction band in a ferromagnet and

$$\lambda = \frac{J d_M}{\gamma \sqrt{2 T_C D_S^3}} \frac{7 \xi(3)}{2 \pi^2} \quad (10)$$

accounting for the magnetic stiffness J of the ferromagnetic layer. Here $\eta = v_{\text{FM}}/v_{\text{FS}}$ is the ratio of the Fermi velocities of the ferromagnet v_{FM} and superconductor v_{FS} , D_{S} is the diffusion coefficient in the superconductor and γ is the electronic density of states for a superconductor. The obtained phase diagram is represented in Fig. 2 of Ref. 12. The curves are plotted for different values of $\tau = (T_{\text{C}} - T)/T_{\text{C}}$.

In the following we make an estimate for our samples according to the phase diagram of Bergeret *et al.* [12]. The magnetic stiffness J is roughly proportional to the Curie temperature. For Fe with $T_{\text{Curie}} \sim 1000$ K it is of the order of 600 K/nm. So, for our sample 2 with $T_{\text{Curie}} \sim 100$ K it should be 60 K/nm. As we supposed above, the exchange splitting of the conduction band of ferromagnetic Pd_{0.97}Fe_{0.03} is $h \sim 100$ K, the Fermi velocity $v_{\text{FS}} = 3 \cdot 10^7$ cm/s corresponds to the diffusion coefficient $D_{\text{S}} \sim 5$ cm²/s. Assuming that the Fermi velocities of conduction electrons in V and Pd_{1-x}Fe_x are close to each other we obtain $a \sim 1.2$ and $\lambda \sim 1.3 \cdot 10^{-3}$ for our sample 2. In accordance to the phase diagram by Bergeret *et al.* [12] this implies that starting from $\tau \sim 0.2$ ($T \sim 3$ K) a transition from the ferromagnetic to the cryptoferromagnetic state should take place. Actually this transition is observed experimentally at $T \sim 2$ K which is close to the expected transition point. For the sample 1 with $d_{\text{M}} \sim 4.4$ nm and $T_{\text{Curie}} \sim 250$ K we have $a \sim 20$ and $\lambda \sim 1.4 \cdot 10^{-2}$. With these values of parameters the ferromagnetic state is stable at any temperatures, as it is observed experimentally. Thus, these estimates support the conclusion concerning the observation of a phase transition from the ferromagnetic to the cryptoferromagnetic state in our sample 2.

5. Summary

In summary, FMR measurements of V/Pd_{1-x}Fe_x bilayers prepared by molecular beam epitaxy have been performed over a wide temperature range. We find a decrease of the saturation magnetization of the Pd_{1-x}Fe_x magnetic layer below the superconducting transition temperature for the V/Pd_{1-x}Fe_x bilayer system with $x \sim 0.03$ and $d_{\text{Pd-Fe}} = 1.2$ nm. We regard this as a clear indication of the formation of the non-homogeneous cryptoferromagnetic state in the Pd_{1-x}Fe_x layer due to S/F proximity effect.

Acknowledgements

The authors would like to thank Dr. S.Ya. Khlebnikov (Kazan) for his assistance in the low temperature measurements and J. Podschwadek (Bochum) for assistance in the sample preparation. This work is supported by the Deutsche Forschungsgemeinschaft (SFB 491) and by the Russian Fund for Basic Research (Project No. 02-02-16688).

References

1. Buzdin A.I., Bulaevskii L.N., Kulic M.L., Panyukov S.V. *Adv. Phys.* **34**, 175 (1985).
2. Garifullin I.A. *J. Magn. Magn. Mater.* **240**, 574 (2002).

3. Izyumov Yu.A., Proshin Yu.N., Khusainov M.G. *Physics – Uspekhi* **45**, 109 (2002).
4. Alekseevskii N.E., Garifullin I.A., Kochelaev B.I., and Kharakhash'yan E.G. *JETP Lett.* **18**, 189 (1973).
5. Kochelaev B.I., Kharakhash'yan E.G., Garifullin I.A., and Alekseevskii N.E. *Proceedings of the Eighteenth Congress AMPERE, Nottingham, 1974*, p.23 (1974) (invited).
6. Alekseevskii N.E., Garifullin I.A., Kochelaev B.I., and Kharakhash'yan E.G. *Sov.Phys. JETP*, **45**, 799 (1977).
7. Anderson P.W., Suhl H. *Phys.Rev.*, **116**, 898 (1959).
8. Hurault J.P. *J.de Phys.* **26**, 252 (1965).
9. Kochelaev B.I., Tagirov L.R., and Khusainov M.G. *Sov.Phys. JETP* **49**, 291 (1979).
10. Buzdin A.I., Bulaevskii L.N. *Sov. Phys. JETP* **67**, 576 (1988).
11. Mühge Th., Garif'yanov N.N., Goryunov Yu.V., Theis-Bröhl K., Westerholt K., Garifullin I.A., Zabel H. *Physica C* **296**, 325 (1998).
12. Bergeret F.S., Efetov K.B., Larkin A.I. *Phys. Rev. B* **62**, 11872 (2000).
13. Bagguley D.M.S., and Robertson J.A. *J. Phys.F* **4**, 2282 (1974).
14. Nieuwehuys G.J. *Adv.Phys.* **24**, 515 (1975).
15. Pippard A.B. *Rep. Prog. Phys.* **23**, 176 (1960).
16. Gschneider K.A. *Solid State Phys.* **16**, 275 (1964).
17. Crangle J. *Phil. Mag.* **5**, 335 (1960).
18. Suhl H. *Phys. Rev.* **97**, 555 (1955).

МЕТОД ПРОИЗВОДЯЩЕГО ФУНКЦИОНАЛА ДЛЯ МОДЕЛИ ХАББАРДА

Ю.А. Изюмов, Н.И. Чашин, Д.С. Алексеев

Институт физики металлов УРО РАН, 620219 Екатеринбург

Для модели Хаббарда в условиях сильных корреляций развивается метод производящего функционала, позволяющий получить уравнения для электронной функции Грина с вариационными производными по флуктуирующим полям. Метод представляет обобщение подхода Каданова-Бейма, разработанного для обычных ферми-систем, к сильно коррелированным системам, описываемым операторами (X -операторами Хаббарда), не коммутирующими на c -число. В точных уравнениях для функций Грина выделены уравнения среднего поля, учитывающие вклад статических флуктуаций спина и заряда. Устанавливается связь этих уравнений с уравнениями, возникающими в методе композитных операторов. Показано, что двухполюсная функция Грина в приближении среднего поля описывает существенные черты квазичастичного спектра и его эволюцию при изменении электронной концентрации n и величины кулоновского отталкивания U на узле. При половинном заполнении с изменением U возникает фазовый переход металл-диэлектрик при критическом значении $U \approx 1.37W$, где W – ширина затравочной зоны.

1. Введение

Модель Хаббарда [1] является одной из базовых моделей в теории сильно коррелированных систем. Несмотря на ее простоту (гамильтониан модели содержит лишь два параметра: ширину W затравочной электронной зоны и кулоновское отталкивание U электронов на одном узле), теоретическое исследование модели в условиях сильной корреляции ($U \geq W$) представляет очень сложную задачу. За сорок лет исследования модели предложено множество подходов: метод расщепления функций Грина (ФГ) [1], линеаризация уравнений движения [2], метод композитных операторов COM [3-5], метод моментов [6], вариационный метод [7] и многие другие. В последние годы успешно применяется приближение динамического среднего поля (DMFT) [8], метод вспомогательных бозонов [9] и ряд вычислительных методов: квантовый метод Монте Карло, линеаризация малых кластеров. DMFT и численные методы вскрыли основные черты квазичастичного спектра и фазовой диаграммы модели в условиях сильной корреляции. В рамках этих подходов некоторые расширения простейшей невырожденной модели Хаббарда успешно применяются для описания реальных сильно коррелированных систем.

Ни один из перечисленных аналитических методов не является универсальным, поэтому существует потребность в развитии новых подходов, которые смогли бы осветить проблему с иной стороны. Уже давно было понятно, что при $U \geq W$ удобно работать не с обычными ферми-операторами, но с некоторыми их конструкциями (композиционными операторами), описывающими движение коррелированных электронов по решетке. Одними из таких операторов являются X -операторы Хаббарда. В терминах X -операторов гамильтониан модели записывается так, что сильное кулоновское взаимодействие описывается простейшим образом, а перескок электронов по решетке – более сложным, но в условиях $U \ll W$ он может рассматриваться по теории возмущений. Таким образом, использование X -операторов удобно для формулировки "теории возмущений вблизи атомного предела".

Используя формализм X -операторов, мы развиваем метод производящего функционала (generating functional approach – GFA). Идея метода состоит в том, чтобы ввести взаимодействие с флуктуирующими полями, путем соответствующего обобщения статистической суммы. Тогда реальные ФГ модели выражаются через вариационные производные от производящего функционала (обобщенной статистической суммы) по флуктуирующим полям. В итоге для ФГ мы получаем уравнения в вариационных производных, которые можно решать с помощью итераций по параметру W/U . Наш подход представляет обобщение метода Каданова-Бейма [10], предложенного ранее для обычных ферми-систем, на сильно коррелированные системы, которые описываются операторами, не коммутирующими на c -число. Недавно мы применили такой подход к целому ряду спиновых и электронных моделей: модели Гайзенберга, sd -модели, модели двойного обмена, tJ -модели, периодической модели Андерсона и модели Хаббарда в пределе $U \rightarrow \infty$ [11-16]. В настоящей работе мы развиваем GFA для общей модели Хаббарда с произвольным U . Мы выводим уравнения для электронной ФГ в терминах вариационных производных по флуктуирующим полям. Уравнения имеют матричную структуру и сразу предусматривают возможность состояний с расщепленной электронной зоной на хаббардовские подзоны. Путем двух итераций по параметру W/U мы формулируем приближение среднего поля для электронной ФГ, которое непосредственным образом учитывает статические флуктуации заряда и спина, описывает сдвиг электронных подзон и их ширину за пределами Хаббард-I приближения. Динамические флуктуации электронов с бозонными возбуждениями приводят к поправке в собственной энергии, соответствующей самосогласованному борновскому приближению (SCBA). Численное решение уравнений среднего поля дает картину квазичастичного спектра и его эволюцию в зависимости от величины U и электронной концентрации n .

2. Производящий функционал модели

Рассмотрим стандартную невырожденную модель Хаббарда. В терминах обычных ферми-операторов гамильтониан модели записывается следующим образом:

$$\mathcal{H} = \sum_{ij\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^+ c_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (2.1)$$

где $c_{i\sigma} (c_{i\sigma}^+)$ – оператор уничтожения (рождения) электрона на узле i со спином σ , $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^+ c_{i\sigma}$ оператор числа электронов на узле с соответствующей проекцией спина. В условиях сильного кулоновского отталкивания на одном узле $U > zt$ (где t – матричный элемент перескока для ближайших соседей и z – координационное число) удобно выразить гамильтониан (2.1) в терминах X -операторов. Оператор X_i^{pq} для узла i описывает переходы между четырьмя возможными состояниями $p = |0\rangle, |\sigma\rangle, |\bar{\sigma}\rangle, |2\rangle$: без электрона, с одним электроном с проекцией спина σ или $-\sigma$ и состояние с парой электронов, соответственно.

X -операторы могут быть выражены через обычные ферми-операторы с помощью соотношений

$$\begin{aligned} X_i^{\sigma 0} &= c_{i\sigma}^+ (1 - n_{i\bar{\sigma}}), & X_i^{2\sigma} &= \sigma c_{i\bar{\sigma}}^+ n_{i\sigma}, \\ X_i^{\sigma\bar{\sigma}} &= c_{i\sigma}^+ c_{i\bar{\sigma}}, & X_i^{20} &= \sigma c_{i\bar{\sigma}}^+ c_{i\sigma}^+, \\ X_i^{\sigma\sigma} &= n_{i\sigma} (1 - n_{i\bar{\sigma}}), & X_i^{22} &= n_{i\sigma} n_{i\bar{\sigma}}, \\ X_i^{00} &= (1 - n_{i\sigma})(1 - n_{i\bar{\sigma}}). \end{aligned} \quad (2.2)$$

Операторы $X_i^{\sigma 0}$ и $X_i^{2\sigma}$ описывают коррелированное рождение электрона и являются ферми-подобными f -операторами; $X_i^{\sigma\bar{\sigma}}$ и X_i^{20} описывают переворот спина на узле и рождение пары (бозе-подобные b -операторы). В последних двух строчках представлены диагональные в пространстве узельных состояний X -операторы. Заметим, что эрмитово-сопряженные операторы определяются соотношением $(X_i^{pq})^+ = X_i^{qp}$. Таким образом, имеется шестнадцать X -операторов, действующих в пространстве узельных состояний. Алгебра X -операторов задается соотношением

$$X_i^{rs} X_i^{pq} = \delta_{sp} X_i^{rq}, \quad (2.3)$$

а также перестановочными соотношениями антикоммутаторного типа для f -операторов и коммутаторного для b -операторов. Обычные электронные операторы являются линейными комбинациями ферми-подобных X -операторов

$$c_{i\sigma}^+ = X_i^{\sigma 0} - \sigma X_i^{2\bar{\sigma}}, \quad c_{i\sigma} = X_i^{0\sigma} - \sigma X_i^{\bar{\sigma} 2}. \quad (2.4)$$

Метод производящего функционала для модели Хаббарда

Данные выражения отражают коррелированный характер движения электронов в двух хаббардовских подзонах.

Удобно ввести двухкомпонентные спиноры из f -операторов:

$$\Psi(i\sigma) = \begin{pmatrix} X_i^{0\sigma} \\ \bar{\sigma} X_i^{\bar{\sigma}2} \end{pmatrix}, \quad \Psi^+(i\sigma) = \begin{pmatrix} X_i^{\sigma 0} & \bar{\sigma} X_i^{2\bar{\sigma}} \end{pmatrix}. \quad (2.5)$$

Тогда гамильтониан (2.1) представляется в виде $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$, где

$$\mathcal{H}_0 = \sum_i \left(\sum_{\sigma} \varepsilon_{\sigma} X_i^{\sigma\sigma} + \varepsilon_2 X_i^{22} \right), \quad (2.6)$$

$$\mathcal{H}_1 = \sum_{ij} \sum_{\sigma} \sum_{\alpha_1 \alpha_2} \Psi_{\alpha_1}^+(i\sigma) t_{\alpha_1 \alpha_2}(ij) \Psi_{\alpha_2}(j\sigma). \quad (2.7)$$

Здесь мы добавили в определение гамильтониана (2.1) член $-\mu \sum_{i\sigma} n_{i\sigma}$, где μ – химический потенциал; с учетом этого обстоятельства получим: $\varepsilon_{\sigma} = -\sigma h/2 - \mu$, $\varepsilon_2 = U - 2\mu$. В квадратичной форме (2.7) $\Psi_{\alpha}(i\sigma)$ представляет компоненту спинора $\Psi(i\sigma)$, ($\alpha = 1, 2$), кроме того мы ввели матрицу

$$t_{\alpha\beta}(ij) = t_{ij} \mathfrak{T}_{\alpha\beta}, \quad \mathfrak{T} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

Спинорный индекс α указывает номер хаббардовской подзоны. С помощью известного правила умножения (2.3) X -операторов легко записать перестановочные соотношения для спинорных f -операторов:

$$\left. \begin{aligned} [\Psi(i\sigma) \otimes \Psi^+(j\sigma)]_+ &= \delta_{ij} F_i^{\sigma} \\ [\Psi(i\sigma) \otimes \Psi^+(j\bar{\sigma})]_+ &= \delta_{ij} X_i^{\bar{\sigma}\sigma} \tau^z \\ [\Psi(i\sigma) \otimes \Psi(j\bar{\sigma})]_+ &= \delta_{ij} \sigma X_i^{02}(i\tau^y) \end{aligned} \right\}, \quad (2.9)$$

где τ^x, τ^y, τ^z – матрицы Паули, а F_i^{σ} – двухрядная матрица, составленная из диагональных X -операторов:

$$F_i^{\sigma} = \begin{pmatrix} X_i^{00} + X_i^{\sigma\sigma} & 0 \\ 0 & X_i^{22} + X_i^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}} \end{pmatrix}. \quad (2.10)$$

Перестановочные соотношения между f - и b -операторами имеют коммутаторный характер,

$$\left. \begin{aligned} [\Psi(i\sigma_1), X_i^{\sigma_2\bar{\sigma}_2}]_- &= \delta_{ij} \delta_{\sigma_1\sigma_2} \Psi(i\bar{\sigma}_1) \\ [\Psi(i\sigma_1), X_i^{20}]_- &= \delta_{ij} \bar{\sigma}_1 \Psi^+(i\bar{\sigma}_1) \tau^x \end{aligned} \right\}. \quad (2.11)$$

Другие варианты перестановочных соотношений типа (2.9) и (2.11) дают нуль.

Таким образом, антикоммутаторы двух Ψ -операторов выражаются через диагональные или b -операторы, а коммутаторы Ψ и b -операторов представляют, естественно, Ψ -операторы. Отметим попутно два соотношения

$$(X_i^{pq})^+ = X_i^{qp}, \quad (2.12)$$

$$X_i^{00} + X_i^{\sigma\sigma} + X_i^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}} + X_i^{22} = 1, \quad (2.13)$$

которые дополняют алгебру X -операторов.

Запишем уравнения движения для f -операторов. Для термодинамического времени τ ($-\beta \leq \tau \leq \beta$, $\beta = 1/kT$) исходим из уравнения Гейзенберга

$$\dot{\Psi}(1\sigma) = -[\Psi(1\sigma), \mathcal{H}],$$

которое в случае гамильтониана (2.6)–(2.7) можно записать в следующем виде

$$\begin{aligned} \dot{\Psi}(1\sigma_1) = & -E_1^{\sigma_1} \Psi(1\sigma_1) - F_1^{\sigma_1} \hat{t}(1'1') \Psi(1'\sigma_1) - \\ & - X_1^{\bar{\sigma}_1\sigma_1} \tau^z \hat{t}(1'1') \Psi(1'\bar{\sigma}_1) + \bar{\sigma}_1 \Psi^+(1'\bar{\sigma}_1) \hat{t}(1'1') i\tau^y X_1^{02}. \end{aligned} \quad (2.14)$$

Здесь введена двухрядная матрица по спинорным индексам

$$E_1^{\sigma} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{\sigma} & 0 \\ 0 & \varepsilon_{\sigma} + U \end{pmatrix}. \quad (2.15)$$

Цифровые индексы здесь и далее означают четырехмерную координату, включающую узел и время τ , т.е. $1 = (i_1, \tau_1), \dots$; по штрихованным индексам подразумевается суммирование (суммирование по узлам i и интегрирование по времени τ). Наконец, введена величина

$$\hat{t}(11') = \delta(\tau_1 - \tau_1') t_{i_1 i_1'} \mathfrak{Z} \equiv t(11') \mathfrak{Z} \quad (2.16)$$

представляющая матрицу по спинорным индексам (последний факт отмечен символом $\hat{t}$).

Таким образом оператор $\dot{\Psi}$ представляет линейную комбинацию f -операторов, коэффициентами в которой являются бозе-подобные b -операторы,

а также матрицы E и $\hat{t}$. Аналогичное уравнение движения можно записать для эрмитово-сопряженного оператора

$$\begin{aligned} \dot{\Psi}^+(1\sigma_1) = & E_1^{\sigma_1} \Psi^+(1\sigma_1) + \Psi^+(1'\sigma_1) \hat{t}(1'1) F_1^{\sigma_1} + \\ & + \Psi^+(1'\bar{\sigma}_1) \hat{t}(1'1) \tau^z X_1^{\sigma_1\bar{\sigma}_1} + \bar{\sigma}_1 X_1^{20} i \tau^y \hat{t}(11') \Psi(1'\bar{\sigma}_1). \end{aligned} \quad (2.17)$$

Следуя методу, многократно примененному нами к разным квантовым моделям [11–15], введем производящий функционал

$$Z[V] = \text{Tr} \left(e^{-\beta \mathcal{H}} T e^{-V} \right), \quad (2.18)$$

где T – символ хронологического упорядочения, и след берется по всем возможным состояниям системы.

Для гамильтониана (2.6) – (2.7) оператор V следует выбрать в виде

$$V = v_1^{00} X_1^{00} + v_1^{22} X_1^{22} + v_i^{\sigma'\sigma'} X_i^{\sigma'\sigma'} + v_i^{\sigma'\bar{\sigma}'} X_i^{\sigma'\bar{\sigma}'} + v_1^{02} X_1^{20} + v_1^{20} X_1^{02}. \quad (2.19)$$

Он представляет линейную комбинацию всех диагональных и b -операторов с одноточечными полями v . Таким образом, дифференцируя выражение $Z[V]$ по разным v , мы можем выразить различные ФГ через вариационные производные по соответствующим полям. Например, для одночастичных бозеподобных ФГ – плазмонов, магнонов и дублонов – имеем выражения:

$$\mathcal{N}^{\sigma_1\sigma_2}(12) = -\langle T X_1^{\sigma_1\sigma_1} X_2^{\sigma_2\sigma_2} \rangle_V = -\frac{1}{Z[V]} \frac{\delta^2 Z[V]}{\delta v_1^{\sigma_1\sigma_1} \delta v_2^{\sigma_2\sigma_2}}, \quad (2.20)$$

$$\mathcal{D}^{\sigma\bar{\sigma}}(12) = -\langle T X_1^{\sigma\bar{\sigma}} X_2^{\bar{\sigma}\sigma} \rangle_V = -\frac{1}{Z[V]} \frac{\delta^2 Z[V]}{\delta v_1^{\sigma\bar{\sigma}} \delta v_2^{\bar{\sigma}\sigma}}, \quad (2.21)$$

$$\mathcal{D}^{02}(12) = -\langle T X_1^{02} X_2^{20} \rangle_V = -\frac{1}{Z[V]} \frac{\delta^2 Z[V]}{\delta v_1^{02} \delta v_2^{20}}. \quad (2.22)$$

Введенные таким образом ФГ являются функционалами от флуктуирующих полей. Если после взятия вариационных производных устремить эти поля к нулю, мы получим реальные ФГ, описывающие нашу систему. Фермионные ФГ не могут быть получены дифференцированием $Z[V]$ по одноточечным полям, и необходимо для них составить уравнение движения.

3. Уравнение движения для электронной функции Грина

Воспользуемся общим уравнением движения (см. приложение в [15]) и запишем его для выражения $((T\Psi_1\Psi_2^+))$, определяющего электронную ФГ:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial \tau_1} ((T\Psi_{\alpha_1}(1\sigma_1)\Psi_{\alpha_2}^+(2\sigma_2)e^{-V})) = & ((T\{\Psi_{\alpha_1}(1\sigma_1), \Psi_{\alpha_2}^+(2\sigma_2)\}_+ e^{-V})) + \\ & + ((T\Psi_{\alpha_1}(1\sigma_1)\Psi_{\alpha_2}^+(2\sigma_2)e^{-V})) - ((T\{\Psi_{\alpha_1}(1\sigma_1), V\}_- \Psi_{\alpha_2}^+(2\sigma_2)e^{-V})) \end{aligned} \quad (3.1)$$

Вычислим антикоммутатор и коммутатор от Ψ -операторов в (3.1). Учитывая соотношения (2.9) и (2.11), получим:

$$\{\Psi_{\alpha_1}(1\sigma_1), \Psi_{\alpha_2}^+(2\sigma_2)\}_+ = \delta_{12} \left(\delta_{\sigma_1\sigma_2} \left(F_1^{\sigma_1} \right)_{\alpha_1\alpha_2} + \delta_{\bar{\sigma}_1\sigma_2} \tau^z \left(X_1^{\bar{\sigma}_1\sigma_1} \right)_{\alpha_1\alpha_2} \right), \quad (3.2)$$

$$\{\Psi(1\sigma_1), V\}_- = W_1^{\sigma_1} \Psi(1\sigma_1) + v_1^{\bar{\sigma}_1\sigma_1} \Psi(1\bar{\sigma}_1) + \bar{\sigma}_1 v_1^{02} \Psi^+(1\bar{\sigma}_1) \tau^x, \quad (3.3)$$

здесь W – двухрядная матрица, составленная из флуктуирующих полей:

$$W_1^\sigma = \begin{pmatrix} v_1^{\sigma\sigma} - v_1^{00} & 0 \\ 0 & v_1^{22} - v_1^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}} \end{pmatrix}. \quad (3.4)$$

После подстановки выражений (2.14) и коммутаторов в уравнение (3.1) его можно представить в виде:

$$\begin{aligned} G_{0V}^{-1}(1\sigma_1, 1'\sigma'_1)((T\Psi(1'\sigma'_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V})) = & \\ = -\delta_{12} \left[\delta_{\sigma_1\sigma_2} ((TF_1^{\sigma_1} e^{-V})) + \delta_{\bar{\sigma}_1\sigma_2} \tau^z ((TX_1^{\bar{\sigma}_1\sigma_1} e^{-V})) \right] + & \\ + \bar{\sigma}_1 v_1^{02} \tau^x ((T\Psi^+(1\bar{\sigma}_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V})) + & \\ + ((TF_1^{\sigma_1} \hat{t}(11')\Psi(1'\sigma_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V})) + & \\ + \tau^z \hat{t}(11')((TX_1^{\bar{\sigma}_1\sigma_1}\Psi(1'\bar{\sigma}_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V})) + & \\ + \sigma_1 ((TX_1^{02}\Psi^+(1'\bar{\sigma}_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V})) \hat{t}(1'1) i\tau^y & \end{aligned} \quad (3.5)$$

Здесь введена величина

$$G_{0V}^{-1}(1\sigma_1, 2\sigma_2) = \left\{ \left(-\frac{\partial}{\partial \tau_1} - E_1^{\sigma_1} \right) \delta_{\sigma_1\sigma_2} - W_1^{\sigma_1} \delta_{\sigma_1\sigma_2} - v_1^{\bar{\sigma}_1\sigma_1} \tau^0 \delta_{\bar{\sigma}_1\sigma_2} \right\} \delta_{12}, \quad (3.6)$$

которая определяет электронный пропагатор нулевого (по отношению к перескокам) приближения во флуктуирующих одноточечных полях. Эта величина является матрицей 2×2 по отношению к спинорным индексам. Выражая смешанные ФГ через вариационные производные от $Z[V]$, можем представить полученное уравнение в виде

Метод производящего функционала для модели Хаббарда

$$\begin{aligned}
 G_{0V}^{-1}(1\sigma_1, 1'\sigma'_1)((T\Psi(1'\sigma'_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V})) = \\
 = -\delta_{12}\hat{a}_1(\sigma_1\sigma_2)Z[V] + \hat{a}_1(\sigma_1\sigma'_1)\hat{t}(11')((T\Psi(1'\sigma'_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V})) - \\
 - \sigma_1 \left[v_1^{02}\tau^x\delta_{11'} - i\tau^y\hat{t}(11')\frac{\delta}{\delta v_1^{02}} \right] ((T\Psi^+(1'\bar{\sigma}_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V}))
 \end{aligned} \quad (3.7)$$

Здесь введена двухрядная матрица, являющаяся дифференциальным оператором по одноточечным флуктуирующим полям:

$$\hat{a}_1(\sigma_1\sigma_2) = \left(\delta_{\sigma_1\sigma_2} \bar{F}_1^{\sigma_1} - \delta_{\bar{\sigma}_1\sigma_2} \tau^z \frac{\delta}{\delta v_1^{\bar{\sigma}_1\sigma_1}} \right), \quad (3.8)$$

где

$$\bar{F}_1^{\sigma} = \begin{pmatrix} \frac{\delta}{\delta v_1^{00}} + \frac{\delta}{\delta v_1^{\sigma\sigma}} & 0 \\ 0 & \frac{\delta}{\delta v_1^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}}} + \frac{\delta}{\delta v_1^{22}} \end{pmatrix}. \quad (3.9)$$

Отметим также, что $\hat{t}$ является транспонированной матрицей $\hat{t}$.

Как обычно переходим от функционала $Z[V]$ к функционалу $\Phi[V]$ с помощью подстановки:

$$Z[V] = e^{\Phi[V]}. \quad (3.10)$$

Тогда уравнение (3.5) непосредственно приводит к уравнению для электронной ФГ:

$$\begin{aligned}
 \left[G_{0V}^{-1}(1\sigma_1, 1'\sigma'_1) - (\hat{a}_1(\sigma_1\sigma'_1)\Phi)\hat{t}(11') - \right. \\
 \left. - \hat{a}_1(\sigma_1\sigma'_1)\hat{t}(11') \right] \langle T\Psi(1'\sigma'_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V} \rangle = \\
 = -\delta_{12}(\hat{a}_1(\sigma_1\sigma_2)\Phi) - \sigma_1\delta_{11'}v_1^{02} \langle T\Psi^+(1'\bar{\sigma}_1)\tau^x\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V} \rangle - \\
 - \sigma_1 \left(\frac{\delta\Phi}{\delta v_1^{02}} + \frac{\delta}{\delta v_1^{02}} \right) \langle T\Psi^+(1'\bar{\sigma}_1)\hat{t}(1'1')i\tau^y\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V} \rangle
 \end{aligned} \quad (3.11)$$

Мы видим, что уравнение для ФГ $\langle T\Psi\Psi^+e^{-V} \rangle$ включает в себя аномальную ФГ $\langle T\Psi^+\Psi^+e^{-V} \rangle$, поэтому необходимо написать уравнение и для нее.

Введем матрицу ФГ

$$\mathcal{L}(\underline{1}\underline{2}) = - \begin{pmatrix} \langle T\Psi(1\sigma_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V} \rangle & \langle T\Psi(1\sigma_1)\Psi(2\sigma_2)e^{-V} \rangle \\ \langle T\Psi^+(1\sigma_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V} \rangle & \langle T\Psi^+(1\sigma_1)\Psi(2\sigma_2)e^{-V} \rangle \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

В левой части цифровой подчеркнутый индекс $\underline{1}$ представляет совокупный индекс, включающий пространственно-временную точку 1 , спин σ_1 , спинорный индекс α_1 и еще один индекс ν_1 , принимающий два значения, нумерующие матричные элементы (3.12), так что

$$\underline{1} = \{1\sigma_1\alpha_1\nu_1\}. \quad (3.13)$$

Матрица $\mathcal{L}(\underline{1}\underline{2})$ является по совокупности дискретных индексов матрицей 8×8 . Именно такого ранга матрицы автоматически возникают в модели Хаббарда. Их появление описывает не только состояния с куперовскими парами, но и с другими нарушениями симметрии.

Совокупность четырех уравнений для ФГ в (3.12) можно записать в виде одного матричного уравнения:

$$\left[L_{0\nu}^{-1}(\underline{1}\underline{1}') - (\mathcal{A}\Phi Y)(\underline{1}\underline{1}') - (\mathcal{A}Y)(\underline{1}\underline{1}') \right] \mathcal{L}(\underline{1}'\underline{2}) = (\mathcal{A}\Phi)(\underline{1}\underline{2}) \quad (3.14)$$

Здесь введена операторная матрица

$$\mathcal{A}(\underline{1}\underline{2}) = \delta_{12} \begin{pmatrix} \hat{a}_1(\sigma_1\sigma_2) & -\sigma_1\delta_{\bar{\sigma}_1\sigma_2}i\tau^y \frac{\delta}{\delta v_1^{02}} \\ -\sigma_1\delta_{\bar{\sigma}_1\sigma_2}i\tau^y \frac{\delta}{\delta v_1^{20}} & \hat{a}_1(\sigma_2\sigma_1) \end{pmatrix}, \quad (3.15)$$

в которой каждый элемент представляет матрицу 2×2 по спинорным индексам, скрытым в матрицах Паули и в матрице $\hat{a}_1$, причем элементами ее являются вариационные производные по всем флуктуирующим полям. Кроме того в уравнение (3.14) входит матрица

$$Y(\underline{1}\underline{2}) = \begin{pmatrix} \hat{t}(12) & 0 \\ 0 & -\hat{t}(12) \end{pmatrix}. \quad (3.16)$$

Величина $L_{0\nu}^{-1}$ представляет двухрядную матрицу

$$L_{0\nu}^{-1}(\underline{1}\underline{2}) = \delta_{12} \begin{pmatrix} G_{0\nu}^{-1}(1\sigma_1, 2\sigma_2) & \sigma_1\delta_{\bar{\sigma}_1\sigma_2}\delta_{12}\tau^x v_1^{02} \\ -\sigma_1\delta_{\bar{\sigma}_1\sigma_2}\delta_{12}\tau^x v_1^{20} & \tilde{G}_{0\nu}^{-1}(1\sigma_1, 2\sigma_2) \end{pmatrix}, \quad (3.17)$$

в которой $G_{0\nu}^{-1}$ дается выражением (3.6), и $\tilde{G}_{0\nu}^{-1}$ – транспонированным к нему:

$$\tilde{G}_{0\nu}^{-1}(1\sigma_1, 2\sigma_2) = \left\{ \left(-\frac{\partial}{\partial \tau_1} + E_1^{\sigma_1} \right) \delta_{\sigma_1\sigma_2} + W_1^{\sigma_1} \delta_{\sigma_1\sigma_2} + v_1^{\sigma_1\bar{\sigma}_1} \tau^0 \delta_{\bar{\sigma}_1\sigma_2} \right\} \delta_{12}.$$

Уравнение (3.14) того же типа, что уравнения для одночастичной ФГ, выведенные нами для модели Хаббарда в пределе $U = \infty$ [11,15] и модели

Гейзенберга. В перечисленных моделях матрица $\hat{A}$ вырождается в скаляр, но в данной работе это матрица, определяемая дискретными индексами α и ν , как и другие величины в (3.14). В силу отмеченного сходства уравнения (3.14) с соответствующими уравнениями ранее рассмотренных моделей, мы можем ожидать той же структуры в решениях этих уравнений, в частности мультипликативного характера электронной ФГ. Представим ее в виде произведения пропагаторной L и концевой Π частей, а именно:

$$L(\underline{1}\underline{2}) = L(\underline{1}\underline{1}')\Pi(\underline{1}'\underline{2}). \quad (3.18)$$

Пропагаторная часть удовлетворяет уравнению Дайсона

$$L^{-1}(\underline{1}\underline{2}) = L_{0\nu}^{-1}(\underline{1}\underline{2}) - \Sigma(\underline{1}\underline{2}). \quad (3.19)$$

Представим выражения для собственно-энергетической части в виде суммы двух членов:

$$\Sigma(\underline{1}\underline{2}) = \Sigma'(\underline{1}\underline{2}) + (\Pi Y)(\underline{1}\underline{2}), \quad (3.20)$$

что имело место для ранее рассмотренных моделей. Тогда подставляя (3.18) в (3.14) и необходимые дифференцирования, после сравнения левой и правой частей мы можем получить два уравнения на Π и Σ' :

$$\Pi(\underline{1}\underline{2}) = (\hat{A}\Phi)(\underline{1}\underline{2}) + (YL)(\underline{4}'\underline{3}')\hat{A}(\underline{1}\underline{4}')\Pi(\underline{3}'\underline{2}), \quad (3.21)$$

$$\Sigma'(\underline{1}\underline{2}) = -(YL)(\underline{4}'\underline{3}')\hat{A}(\underline{1}\underline{4}')\left(L_{0\nu}^{-1}(\underline{3}'\underline{2}) - \Sigma'(\underline{3}'\underline{2})\right). \quad (3.22)$$

При получении этих уравнений мы учли тождество

$$(\hat{A}L)(\underline{1}\underline{2}) = -L(\underline{1}'\underline{2}')\left[\hat{A}(\underline{1}\underline{1}')L^{-1}(\underline{2}'\underline{3}')\right]L(\underline{3}'\underline{2}), \quad (3.23)$$

являющееся обобщением известного тождества, выражающего функциональную производную пропагаторной ФГ через производную обратной к ней ФГ:

$$\frac{\delta G}{\delta \nu} = -G \frac{\delta G^{-1}}{\delta \nu} G.$$

Уравнения (3.21) и (3.22) для концевой и собственно-энергетической частей ФГ по структуре аналогичны соответствующим уравнениям других моделей. Это уравнения в вариационных производных для Π и Σ' . Вклад Σ' в собственно энергетическую часть Σ не разрезаем по "линии взаимодействия", представляющей величину Y . Разрезаемая часть Σ уже выделена в выражении (3.20) в виде второго слагаемого.

Из совокупности уравнений (3.18)-(3.20) вытекает одно важное следствие, которое можно представить в форме следующего уравнения на ФГ $\mathcal{L}$:

$$L = L' + L'YL. \quad (3.24)$$

Здесь величина L' определяется двумя соотношениями:

$$L' = L'P, \quad L'^{-1} = L_{0V}^{-1} - \Sigma'.$$

Решение уравнения (3.24) можно записать в виде:

$$L(\underline{1}\underline{2}) = [L'^{-1} - Y]^{-1}(\underline{1}\underline{2}), \quad (3.25)$$

где

$$L'^{-1} = P^{-1}(L_{0V}^{-1} - \Sigma'). \quad (3.26)$$

Величина L' , как следует из определения, не разрезаема по линии Y , поэтому уравнение (3.24) для ФГ является уравнением Ларкина, выражающим ФГ через неприводимую (по линии "взаимодействия") часть. Из этого же уравнения следует "локаторное" представление (3.25) для электронной ФГ.

Уравнения (3.21) и (3.22) можно решать путем итераций. Так в первых порядках по Y получаем:

$$P(\underline{1}\underline{2}) = \bar{A}(\underline{1}\underline{2})\Phi + (YL)(\underline{4}'\underline{3}')\bar{A}(\underline{1}\underline{4}')\bar{A}(\underline{3}'\underline{2})\Phi + \dots, \quad (3.27)$$

$$\begin{aligned} \Sigma'(\underline{1}\underline{2}) = & -(YL)(\underline{4}'\underline{3}')\left[\bar{A}(\underline{1}\underline{4}')L_{0V}^{-1}(\underline{3}'\underline{2})\right] + \\ & + (YL)(\underline{4}'\underline{3}')(YL)(\underline{6}'\underline{1}')\left[\bar{A}(\underline{1}\underline{4}')L_{0V}^{-1}(\underline{1}'\underline{2}')\right]L(\underline{2}'\underline{5}')\left[\bar{A}(\underline{3}'\underline{6}')L_{0V}^{-1}(\underline{5}'\underline{2}')\right] + \dots \end{aligned} \quad (3.28)$$

В (3.27) оператор $\bar{A}$, действуя на Φ , дает среднее значение от диагональных и b -операторов; повторное действие оператора $\bar{A}$ приведет, очевидно, к бозонным ФГ различных типов. Действие оператора на L_v^{-1} приведет к выражениям, состоящим из различных δ -символов. Проблема заключается в перемножении матриц в выражениях (3.27) и (3.28) с учетом того факта, что матрица $\bar{A}(\underline{1}\underline{2})$ содержит производные, которые должны действовать на соответствующие величины. Чтобы выполнить матричное умножение с учетом операторного характера отдельных множителей мы перепишем выражения (3.27) и (3.28) в другой форме:

$$P(\underline{1}\underline{2}) = \bar{A}(\underline{1}\underline{2})\Phi + \bar{A}(\underline{1}\underline{4}')(YL)(\underline{4}'\underline{3}')\bar{A}(\underline{3}'\underline{2})\Phi + \dots, \quad (3.29)$$

$$\begin{aligned} \Sigma'(\underline{1}\underline{2}) = & -\bar{A}(\underline{1}\underline{4}')(YL)(\underline{4}'\underline{3}')L_v^{-1}(\underline{3}'\underline{2}) + \\ & + \bar{A}(\underline{1}\underline{4}')(YL)(\underline{4}'\underline{3}')\bar{A}(\underline{3}'\underline{6}')(YL)(\underline{6}'\underline{1}')L_v^{-1}(\underline{1}'\underline{2}')L(\underline{2}'\underline{5}')L_v^{-1}(\underline{5}'\underline{2}') + \dots \end{aligned} \quad (3.28)$$

В этих выражениях все множители стоят в порядке матричного умножения, но нужно помнить: на какой множитель действуют производные, стоящие в операторе $\hat{A}$. Таким образом, можно перемножить все матрицы, а потом поставить символ производных непосредственно перед элементами матриц $L_{0\nu}^{-1}$ или перед Φ , на которые они должны действовать.

4. Итерации в уравнениях для собственно-энергетической и концевой частей

Согласно определению (3.12), электронная ФГ $\mathcal{L}$ учитывает возможность состояний со спариванием электронов. В данной работе мы будем рассматривать нормальную систему, полностью описывающуюся матричным элементом полной электронной ФГ $\mathcal{L}(1\ 2)$, а именно

$$\mathcal{G}(1\sigma_1 2\sigma_2) \equiv \mathcal{L}^{11}(1\sigma_1 2\sigma_2) = -\langle T\Psi(1\sigma_1)\Psi^+(2\sigma_2)e^{-V} \rangle. \quad (4.1)$$

Здесь верхние цифровые индексы соответствуют индексам ν в (3.13) и нумеруют матричные элементы электронной ФГ (3.12).

Даже в случае нормальной фазы, в которой аномальные ФГ $\mathcal{L}^{12}$ и $\mathcal{L}^{21}$ равны нулю, уравнение для $\mathcal{L}^{11}$ завязано с ними, поскольку оператор $\hat{A}$ содержит вариационные производные по полям ψ_1^{02} и ψ_1^{20} , так что их действие на $\mathcal{L}^{12}$ и $\mathcal{L}^{21}$ дает не нулевой результат, даже если мы затем положим эти поля равными нулю. Нормальную электронную ФГ $\mathcal{G}$ можно искать в стандартном мультипликативном виде

$$\mathcal{G} = G\Lambda, \quad (4.2)$$

причем G удовлетворяет уравнению Дайсона

$$G^{-1} = G_{0\nu}^{-1} - \Sigma, \quad (4.3)$$

а собственно-энергетическую часть можно представить в виде неразрезаемого Σ' и разрезаемого вкладов:

$$\Sigma = \Sigma' + \hat{\Lambda}t. \quad (4.4)$$

В соотношениях (4.2)-(4.4) все величины являются двухрядными матрицами по спинорным индексам с аргументами типа $\mathcal{G}(1\sigma_1 2\sigma_2)$.

Итерации в общих уравнениях (3.21) и (3.22) позволяют получить ряды для величин Σ' и Λ , определенных уравнениями (4.2)-(4.4). В первых двух порядках по t получим следующие выражения для концевой части:

$$A_0^\sigma(k) = \begin{pmatrix} 1 - \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle & 0 \\ 0 & \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle \end{pmatrix}, \quad (4.5)$$

где

$$\langle n^\sigma \rangle = \langle X_i^{\sigma\sigma} + X_i^{22} \rangle = \langle c_{i\sigma}^+ c_{i\sigma} \rangle \quad (4.6)$$

среднее число электронов на узле со спином σ , и

$$A_1^\sigma(k) = \begin{pmatrix} \lambda_1^\sigma(k) & \lambda_2^\sigma(k) \\ -\lambda_1^\sigma(k) & -\lambda_2^\sigma(k) \end{pmatrix}, \quad (4.7)$$

где

$$\lambda_1^\sigma(k) = -\sum_q \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}) \left[(G_{11}^\sigma + G_{21}^\sigma)(k+q) \mathcal{N}^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}}(q) + \right. \\ \left. + (G_{11}^{\bar{\sigma}} + G_{21}^{\bar{\sigma}})(k+q) \mathcal{D}^{\sigma\sigma}(q) + (G_{21}^{\bar{\sigma}} + G_{22}^{\bar{\sigma}})(-k-q) \mathcal{D}^{02}(q) \right], \quad (4.8)$$

$$\lambda_2^\sigma(k) = -\sum_q \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}) \left[(G_{12}^\sigma + G_{22}^\sigma)(k+q) \mathcal{N}^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}}(q) + \right. \\ \left. + (G_{12}^{\bar{\sigma}} + G_{22}^{\bar{\sigma}})(k+q) \mathcal{D}^{\sigma\sigma}(q) + (G_{11}^{\bar{\sigma}} + G_{12}^{\bar{\sigma}})(-k-q) \mathcal{D}^{02}(q) \right]. \quad (4.9)$$

Величины $\mathcal{N}^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}}(k)$, $\mathcal{D}^{\sigma\sigma}(k)$ и $\mathcal{D}^{02}(k)$ представляют фурье-компоненты бозонных ФГ, определенных соотношениями (2.20)–(2.22) с 4-импульсом q . Здесь $\varepsilon(k)$, фурье-компонента $t_{i_1 i_2}$, представляет энергию в затравочной зоне.

Вклад первого порядка в неразрезаемую собственную энергию Σ' определяется выражением:

$$\Sigma_1'^\sigma(k) = -\eta^\sigma \begin{pmatrix} 1 & -1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix}, \quad (4.10)$$

где

$$\eta^\sigma = \sum_k \varepsilon(\mathbf{k}) \left[G_{11}^{\bar{\sigma}}(k) - G_{22}^{\bar{\sigma}}(k) \right]. \quad (4.11)$$

Поправка второго порядка равна:

$$\Sigma_2'^\sigma(k) = \begin{pmatrix} \varphi_1^\sigma(k) & \varphi_2^\sigma(k) \\ -\varphi_1^\sigma(k) & -\varphi_2^\sigma(k) \end{pmatrix}, \quad (4.12)$$

где

$$\begin{aligned} \varphi_1^\sigma(k) = & - \sum_q \sum_{k_1} \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}) \varepsilon(\mathbf{k}_1 + \mathbf{q}) \left[G_{11}^\sigma(k_1) g^{\bar{\sigma}}(k + q) G_{11}^{\bar{\sigma}}(k_1 + q) + \right. \\ & \left. + G_{11}^{\bar{\sigma}}(k_1) g^\sigma(k + q) G_{11}^{\bar{\sigma}}(k_1 + q) + \sum_{\sigma'} G_{22}^{\bar{\sigma}}(-k_1) g^{\sigma'}(k + q) G_{11}^{\bar{\sigma}'}(-k_1 - q) \right] \end{aligned} \quad (4.13)$$

а величина $\varphi_2^\sigma(k)$ получается заменой спинорных индексов в выражении (4.13) $1 \leftrightarrow 2$. Здесь $g^\sigma(k)$ представляет линейную комбинацию матричных элементов пропагаторной ФГ:

$$\begin{aligned} g^\sigma(k) &= G_{11}^\sigma(k) + G_{21}^\sigma(k) - G_{12}^\sigma(k) - G_{22}^\sigma(k) = \\ &= - \frac{U}{[i\omega_n - E_1^\sigma(\mathbf{k})][i\omega_n - E_2^\sigma(\mathbf{k})]} \end{aligned} \quad (4.14)$$

Наконец, выпишем поправку второго порядка в разрезаемую часть Σ , т.е. выражение для $\Sigma_{red}^\sigma \equiv \Lambda^\sigma \hat{t}^\sigma$. Учитывая, что в импульсном представлении $\hat{t}^\sigma$ есть $\varepsilon(k)\mathfrak{Z}$, где $\mathfrak{Z}$ – двухрядная матрица, определенная в (2.8), и выражение (4.8) для $\Lambda_1^\sigma(k)$, получим:

$$\Sigma_{red}^\sigma = \lambda^\sigma(k) \varepsilon(\mathbf{k}) \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -1 & -1 \end{pmatrix}, \quad (4.15)$$

где

$$\begin{aligned} \lambda^\sigma(k) = & \lambda_1^\sigma(k) + \lambda_2^\sigma(k) = - \sum_q \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}) \left[g^\sigma(k + q) \mathcal{N}^{\bar{\sigma}\bar{\sigma}}(q) + \right. \\ & \left. + g^{\bar{\sigma}}(k + q) \mathcal{D}^{\sigma\bar{\sigma}}(q) + \tilde{g}^{\bar{\sigma}}(k + q) \mathcal{D}^{02}(q) \right] \end{aligned} \quad (4.13)$$

$$\tilde{g}^\sigma(k) = G_{21}^\sigma(-k) + G_{22}^\sigma(-k) - G_{11}^\sigma(-k) - G_{12}^\sigma(-k), \quad (4.14)$$

причем

$$\tilde{g}^\sigma(k) = -g^\sigma(-k).$$

Мы видим, что $\Sigma_1^{\prime\sigma}$ не зависит ни от импульса, ни от частоты и определяет лишь энергетический сдвиг, зависящий от спина. Поправки второго порядка $\Sigma_2^{\prime\sigma}(k)$ и $\Sigma_{red}^{\prime\sigma}(k)$ зависят от импульса и частоты. Из выражения (4.16) видно, что вклад в $\Sigma_{red}^{\prime\sigma}$ определяется взаимодействием электронов с бозевскими возбуждениями, тогда как $\Sigma_2^{\prime\sigma}$ определяется только электронными ФГ.

5. Приближение среднего поля

Простейшим приближением типа среднего поля является приближение Хаббард-I, учитывающее вклад в Σ равный $\Lambda_0 \hat{t}$. К нему может быть добавлен вклад первого порядка Σ'_1 , не зависящий от частоты и импульса. Поправка второго порядка Σ'_2 зависит от частоты, однако мы попытаемся извлечь из нее статическую часть, используя следующий анзац.

Обратим внимание на то, что в выражениях, определяющие матричные элементы вклада Σ'_2 под знаком суммирования по импульсу $\mathbf{q}$ входит величина $\varepsilon(\mathbf{k}+\mathbf{q})$, которая может быть факторизована, и в приближении ближайших соседей для кубической решетки может быть выделен фактор $\varepsilon(\mathbf{k})$ из статической ее составляющей. Таким образом, в статическом приближении Σ'_2 может быть аппроксимирована выражением

$$\Sigma'_2(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} p_1^\sigma & p_2^\sigma \\ -p_1^\sigma & -p_2^\sigma \end{pmatrix} \varepsilon(\mathbf{k}), \quad (5.1)$$

где p_1^σ и p_2^σ некоторые константы, зависящие от спина. Выражения для них могут быть выписаны, но мы этого делать не будем, поскольку попытаемся не вычислять их согласно определению, а найти из некоторых общих требований, которым должна удовлетворять электронная ФГ. Такое требование было сформулировано в работах Манчини и его сотрудников (см. ссылки в обобщающей статье [5]), использовавших метод Рот – метод линеаризации уравнений движения для композитных операторов – в модели Хаббарда. Оно состоит в том, чтобы ФГ G_{12} при совпадающих пространственно-временных аргументах обращалась в нуль. Ниже мы используем эту идею для определения параметров p_1^σ и p_2^σ .

Запишем собственно-энергетическую часть электронной ФГ в приближении, учитывающем поправку "Хаббард-I", поправку первого порядка в Σ' (4.10) и второго порядка в форме (5.1). В сумме они составляют Σ_{MF} , соответствующую приближению среднего поля. Таким образом, имеем

$$\Sigma_{MF}^\sigma(\mathbf{k}) = -\eta^\sigma \begin{pmatrix} 1 & -1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 1 - \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle + p_1^\sigma & 1 - \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle + p_2^\sigma \\ \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle - p_1^\sigma & \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle - p_2^\sigma \end{pmatrix} \varepsilon(\mathbf{k}). \quad (5.2)$$

Ясно, что первый член ответственен за сдвиг хаббардовских подзон, а второй – за перенормировку их ширины.

Метод производящего функционала для модели Хаббарда

Пропагаторная ФГ в приближении среднего поля определяется матричным уравнением

$$[G^\sigma(k)]^{-1} = [G_0^\sigma(k)]^{-1} - \Sigma_{MF}^\sigma(k),$$

решение которого представим в виде

$$G_{\alpha\beta}^\sigma(k) = \frac{(\mathcal{P}_1^\sigma)_{\alpha\beta}(\mathbf{k})}{i\omega_n - E_1^\sigma(\mathbf{k})} + \frac{(\mathcal{P}_2^\sigma)_{\alpha\beta}(\mathbf{k})}{i\omega_n - E_2^\sigma(\mathbf{k})}. \quad (5.3)$$

Полюса $E_m^\sigma(\mathbf{k})$ и вычеты $(\mathcal{P}_m^\sigma)_{\alpha\beta}(\mathbf{k})$ даются выражениями:

$$\left. \begin{aligned} (\mathcal{P}_{1,2}^\sigma)_{11}(\mathbf{k}) &= \frac{1}{2} \left[1 \pm \frac{r^\sigma(\mathbf{k})}{2Q^\sigma(\mathbf{k})} \right] \\ (\mathcal{P}_{1,2}^\sigma)_{22}(\mathbf{k}) &= \frac{1}{2} \left[1 \mp \frac{r^\sigma(\mathbf{k})}{2Q^\sigma(\mathbf{k})} \right] \\ (\mathcal{P}_{1,2}^\sigma)_{12}(\mathbf{k}) &= \mp \frac{\eta^\sigma + (1 - \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle + p_2^\sigma)\varepsilon(\mathbf{k})}{2Q^\sigma(\mathbf{k})} \\ (\mathcal{P}_{1,2}^\sigma)_{21}(\mathbf{k}) &= \mp \frac{\eta^\sigma + (\langle n^{\bar{\sigma}} \rangle - p_1^\sigma)\varepsilon(\mathbf{k})}{2Q^\sigma(\mathbf{k})} \end{aligned} \right\}, \quad (5.4)$$

$$E_{1,2}^\sigma(\mathbf{k}) = R^\sigma(\mathbf{k}) \mp Q^\sigma(\mathbf{k}). \quad (5.5)$$

Здесь

$$r^\sigma(\mathbf{k}) = U - [1 - 2\langle n^{\bar{\sigma}} \rangle + p_1^\sigma + p_2^\sigma]\varepsilon(\mathbf{k}),$$

а выражения для $R^\sigma(\mathbf{k})$ и $Q^\sigma(\mathbf{k})$ будут выписаны ниже.

Электронная ФГ $\mathcal{G}^\sigma$ приближения среднего поля находится с помощью общего соотношения (4.2), так что

$$\mathcal{G}^\sigma(k) = G^\sigma(k) A_0^\sigma(k),$$

где $A_0^\sigma(k)$ определяется матричным выражением (4.5).

Электронная ФГ зависит от параметров μ , η^σ , $\langle n^\sigma \rangle$, p_1^σ и p_2^σ , которые должны определяться самосогласованным образом из уравнений

$$\sum_\sigma \langle n_i^\sigma \rangle = n_i, \quad \langle n_i^\sigma \rangle = \sum_{\alpha\beta} \mathcal{G}_{\alpha\beta}^\sigma(i, \tau; i, \tau + 0),$$

а также уравнения (4.11), определяющего параметр η^σ . Параметры p_1^σ и p_2^σ мы определим из требования, вытекающего из свойств X -операторов, а именно:

$$\left. \begin{aligned} \mathcal{G}_{12}^{\sigma}(i, \tau; i, \tau + 0) &= \langle \bar{\sigma} X_i^{2\bar{\sigma}} X_i^{0\sigma} \rangle = 0 \\ \mathcal{G}_{21}^{\sigma}(i, \tau; i, \tau + 0) &= \langle X_i^{\sigma 0} X_i^{\bar{\sigma} 2} \bar{\sigma} \rangle = 0 \end{aligned} \right\}. \quad (5.6)$$

Таким образом, полную систему уравнений для всех пяти параметров можно записать в виде

$$\langle n^{\sigma} \rangle + \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle = n, \quad (5.7)$$

$$\langle n^{\sigma} \rangle = \sum_k [\mathcal{G}_{11}^{\sigma}(k) + \mathcal{G}_{22}^{\sigma}(k)], \quad (5.8)$$

$$\eta^{\sigma} = \sum_k \varepsilon(\mathbf{k}) [\mathcal{G}_{11}^{\bar{\sigma}}(k) - \mathcal{G}_{22}^{\bar{\sigma}}(k)], \quad (5.9)$$

$$\sum_k \mathcal{G}_{12}^{\sigma}(k) = 0, \quad (5.10)$$

$$\sum_k \mathcal{G}_{21}^{\sigma}(k) = 0. \quad (5.11)$$

(Мы предполагаем однородность состояний, поэтому все средние не зависят от номера узла).

Из сравнения двух последних уравнений находим связь между параметрами p_1^{σ} и p_2^{σ}

$$p_1^{\sigma} + p_2^{\sigma} = -(1 - 2\langle n^{\bar{\sigma}} \rangle), \quad (5.11)$$

так что параметр p_2^{σ} можно исключить из всех выражений, определяющих электронную ФГ. Таким образом, выражения (5.4) для вычетов ФГ сводятся к следующим:

$$\left. \begin{aligned} (\mathcal{P}_{1,2}^{\sigma})_{11}(\mathbf{k}) &= \frac{1}{2} \left[1 \pm \frac{U}{2Q^{\sigma}(\mathbf{k})} \right] \\ (\mathcal{P}_{1,2}^{\sigma})_{22}(\mathbf{k}) &= \frac{1}{2} \left[1 \mp \frac{U}{2Q^{\sigma}(\mathbf{k})} \right] \\ (\mathcal{P}_{1,2}^{\sigma})_{12}(\mathbf{k}) &= (\mathcal{P}_{1,2}^{\sigma})_{21}(\mathbf{k}) = \mp \frac{\eta^{\sigma} + (\langle n^{\bar{\sigma}} \rangle - p_1^{\sigma})\varepsilon(\mathbf{k})}{2Q^{\sigma}(\mathbf{k})} \end{aligned} \right\}. \quad (5.13)$$

Выражения для $R^{\sigma}(k)$ и $Q^{\sigma}(k)$, определяющие полюса, оказываются теперь равными

$$\left. \begin{aligned} R^{\sigma}(\mathbf{k}) &= -\sigma \frac{\hbar}{2} - \eta^{\sigma} + (1 + p_1^{\sigma} - \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle)\varepsilon(\mathbf{k}) + \frac{U}{2} - \mu \\ Q^{\sigma}(\mathbf{k}) &= \frac{1}{2} \sqrt{U^2 + 4[\eta^{\sigma} + (\langle n^{\bar{\sigma}} \rangle - p_1^{\sigma})\varepsilon(\mathbf{k})]^2} \end{aligned} \right\}. \quad (5.14)$$

Таким образом, после исключения p_2^σ два уравнения (5.10) и (5.11) сводятся к одному уравнению, которое позволяет определить неизвестный параметр p_1^σ . Выполнив во всех уравнениях (5.8)–(5.11) суммирование по частотам, представим полученную систему уравнений в виде:

$$\langle n^\sigma \rangle = \frac{1}{2}(1 - \mathcal{K}_0^\sigma) - \frac{U}{2} \mathcal{F}_0^\sigma (1 - 2\langle n^{\bar{\sigma}} \rangle), \quad (5.15)$$

$$\eta^\sigma = -U \mathcal{F}_1^{\bar{\sigma}}, \quad (5.16)$$

$$\eta^\sigma \mathcal{F}_0^\sigma + (\langle n^{\bar{\sigma}} \rangle - p_1^\sigma) \mathcal{F}_1^\sigma = 0, \quad (5.17)$$

где обозначено (см. работу [4]):

$$\mathcal{K}_n^\sigma = \frac{1}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \varepsilon^n(\mathbf{k}) \left[\tanh\left(\frac{E_1^\sigma(\mathbf{k})}{2T}\right) + \tanh\left(\frac{E_2^\sigma(\mathbf{k})}{2T}\right) \right], \quad (5.18)$$

$$\mathcal{F}_n^\sigma = \frac{1}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\varepsilon^n(\mathbf{k})}{2Q^\sigma(\mathbf{k})} \left[\tanh\left(\frac{E_1^\sigma(\mathbf{k})}{2T}\right) - \tanh\left(\frac{E_2^\sigma(\mathbf{k})}{2T}\right) \right]. \quad (5.19)$$

К уравнениям (5.15)–(5.17) необходимо приписать уравнение (5.7) на химпотенциал.

Вычислим энергию системы путем усреднения гамильтониана (2.6)–(2.7) по ансамблю Гиббса. Легко выразить ее через электронные ФГ

$$\frac{1}{N} \langle \mathcal{H} \rangle = \sum_{k\sigma} \varepsilon(\mathbf{k}) \sum_{\alpha\beta} \mathcal{G}_{\alpha\beta}^\sigma(k) + U \langle X^{22} \rangle - \mu n, \quad (5.20)$$

где

$$\langle X^{22} \rangle \equiv D = \frac{1}{2} \sum_{k\sigma} \mathcal{G}_{22}^\sigma. \quad (5.21)$$

Подставляя сюда выражения для матричных элементов $\mathcal{G}_{\alpha\beta}^\sigma$, запишем ответ в терминах величин (5.18) и (5.19)

$$\begin{aligned} \frac{1}{N} \langle \mathcal{H} \rangle = & U \langle X^{22} \rangle - \mu n + \\ & + \sum_{\sigma} \left[-\eta^\sigma \langle n^\sigma \rangle - \frac{1}{2} \mathcal{K}_1^\sigma - \frac{U}{2} \mathcal{F}_1^\sigma + \eta^\sigma \mathcal{F}_1^\sigma + (\langle n^{\bar{\sigma}} \rangle - p_1^\sigma) \mathcal{F}_2^\sigma \right], \end{aligned} \quad (5.22)$$

$$\langle X^{22} \rangle = \frac{1}{4} \sum_{\sigma} \langle n^{\bar{\sigma}} \rangle (1 - \mathcal{K}_0^\sigma + U \mathcal{F}_0^\sigma). \quad (5.23)$$

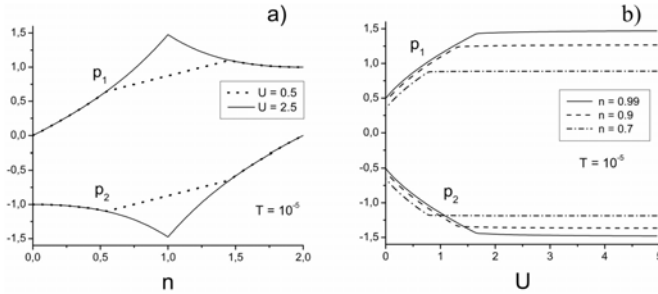


Рис.1. Зависимость параметров p_1 и p_2 от электронной концентрации n (а) и от величины кулоновского взаимодействия U (б)

Исследуем решения нашей системы нелинейных уравнений для парамагнитного случая.

На рис. 1 представлена зависимость параметров p_1 и p_2 от концентрации n и U . Представленные результаты типичны и для других фиксированных параметров. Для всех n и U величина p_1 является положительной, а p_2 – отрицательной. Никаких отрицательных решений для p_1 не обнаружено. Поведение p_1 весьма похоже на решение COM1 для параметра p (так авторы метода COM [3-5] называют решение для $p > 0$). На рис. 2 дается концентрационная зависимость химического потенциала при двух значениях U (здесь и далее все энергетические параметры приводятся в единицах ширины затравочной зоны W). Там же приводится решение COM1, вычисленное нами из уравнений работы [4], для двух вариантов затравочной плотности электронных состояний: соответствующей двумерной квадратной решетке (в приближении ближайших соседей) и модельной плотности состояний

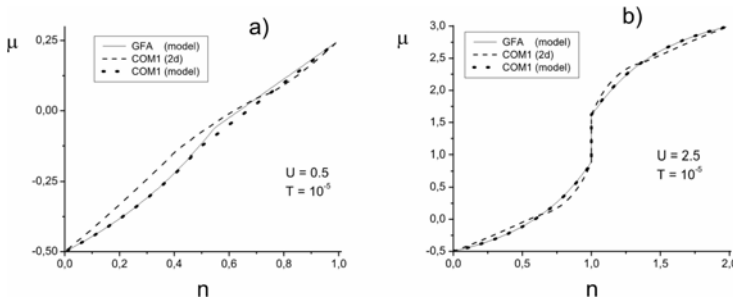


Рис.2. Химический потенциал μ как функция электронной концентрации для двух интервалов а) $0 < n < 1$ и б) $0 < n < 2$

$$\rho(\varepsilon) = \begin{cases} 1, & |\varepsilon| < W/2 \\ 0, & |\varepsilon| > W/2 \end{cases} \quad (5.24)$$

Мы видим, что COM и наш подход GFA дают близкие результаты, причем результат COM1 при использовании 2D и модельной плотностей состояний количественно также близки, поэтому во всех последующих расчетах для GFA мы будем пользоваться ради простоты модельной $\rho(\varepsilon)$.

Несколько хуже совпадение результатов для величины η (рис. 3), хотя качественное согласие расчетов COM1 и GFA имеется. Параметр зависимости двойных состояний D снова дает удовлетворительное согласие двух подходов (рис. 4). Полезно представить зависимость η от n в полном интервале электронной концентрации, при разных величинах U (рис. 5). При уменьшении U участок кривой $\eta(n)$, изображенный прерывистыми линиями, приближается к оси абсцисс, и при $U \rightarrow 0$ видно, что $\eta \rightarrow 0$, как и должно быть в случае невзаимодействующих электронов.

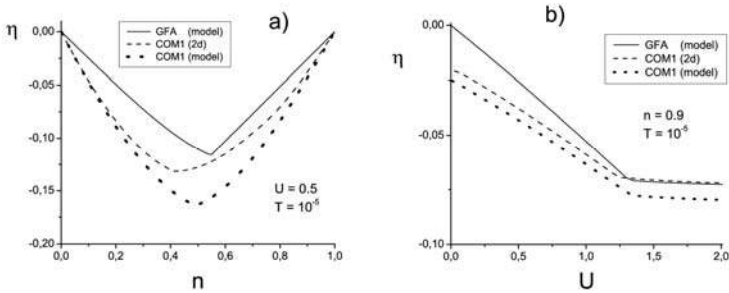


Рис.3. Параметр η как функция n и U

Расчеты показывают, что с уменьшением U величина скачка химпотенциала при $n = 1$ уменьшается и при некотором значении $U_c \approx 1.73W$ обращается в нуль. Это соответствует смыканию хаббардовских подзон и переходу диэлектрик-металл при соответствующем критическом $U_c = \sqrt{2p_1}W$. Эволюция плотности квазичастичных состояний с изменением U показана для двух модельных плотностей состояний в затравочной зоне: постоянной (5.24) – рис. 6 и полуэллиптической –

$$\rho(\varepsilon) = \begin{cases} \frac{4}{\pi W} \sqrt{1 - \left(\frac{2\varepsilon}{W}\right)^2}, & |\varepsilon| < W/2 \\ 0, & |\varepsilon| > W/2 \end{cases} \quad (5.25)$$

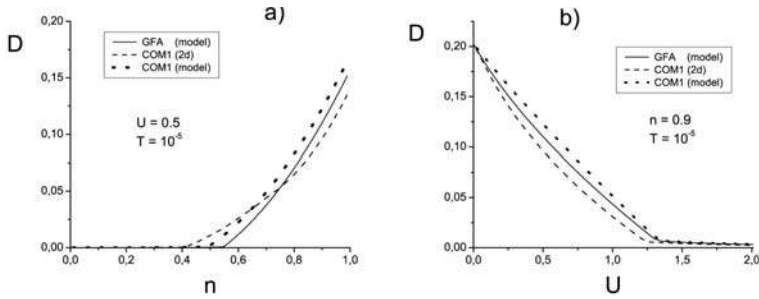


Рис.4. Параметр $D = \langle n^\sigma n^{\bar{\sigma}} \rangle$ заполнения узлов двумя электронами в зависимости от n и U

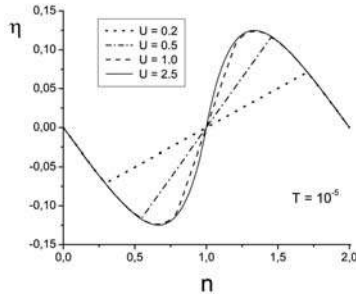


Рис.5. Концентрационная зависимость параметра η при различных значениях U

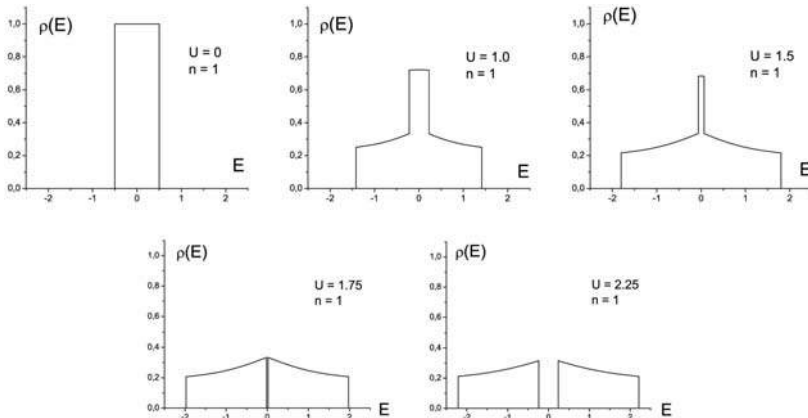


Рис.6. Эволюция квазичастичной плотности состояний при половинном заполнении в зависимости от величины U для модельной плотности состояний (5.24) в затравочной полосе

на рис. 7. В методе COM критическое значение $U_c \approx 1.68W$ [4].

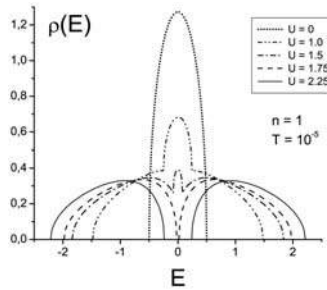


Рис.7. То же, что на рис.6, но для полуэллиптической плотности состояний (5.25).

6. Заключение

Сравним теперь два подхода к модели Хаббарда: развитый в этой статье метод производящего функционала (GFA) и метод композитных операторов [3–5]. Приближения среднего поля в пределах обоих подходов очень близки как по структуре электронной ФГ, так и по рассчитанным с ее помощью физическим свойствам. В обоих случаях имеет место двухполюсная ФГ. Подход COM содержит один параметр p , который находится из условия $G_{12} = 0$. В нашем случае возникает две величины p_1 и p_2 , определяемые из аналогичных условий $G_{12} = 0$ и $G_{21} = 0$. Благодаря связи между этими условиями, один из этих параметров исключается, и в результате электронная ФГ содержит только один параметр p_1 .

По физическому содержанию параметры p и p_1 близки друг другу. В подходе COM параметр p появляется в результате статических флуктуаций спина и заряда. В нашем случае выражение для p_1 также содержит следы статических флуктуаций спина и заряда. Поправки к собственной энергии электронов за счет динамического взаимодействия с бозонами в обоих подходах практически совпадают и соответствуют SCBA.

Уравнения для определения параметров μ , $\langle n^\sigma \rangle$, η , p_1 в нашем случае, и μ , $\langle n^\sigma \rangle$, Δ , p в COM близки друг к другу, но имеют, однако, различные решения. В COM при заданных значениях внешних параметров (n , U , W) имеется два решения: с $p > 0$ (COM1) и $p < 0$ (COM2), тогда как в нашем случае – только одно: с $p_1 > 0$ (второй параметр p_2 при этом всегда отрицательный, но он ничего не определяет, кроме выполнения условия $G_{12} = G_{21} = 0$ для совпадающих аргументов). Замечательным выводом, следующим из расчетов при разных наборах исходных параметров, является то, что несмотря на различия в буквенных выражениях для полюсов и вычетов электронной ФГ в GFA и в COM, расчеты различных электронных

характеристик модели близки друг к другу, если брать только положительные решения $p > 0$ в СОМ. Остается при этом неясным, какой смысл тогда имеют решения с $p < 0$. Имеется и другая формулировка этого вопроса: какими критериями руководствоваться при выборе решений с $p > 0$ или $p < 0$ в СОМ. Авторы этого метода не дают четкого ответа на этот вопрос и руководствуются главным образом совпадением расчетов с данными численных экспериментов.

Идея нахождения параметров p в СОМ и p_1 в методе производящего функционала весьма плодотворна, но она, вообще говоря, нуждается в проверке процедурой самосогласования. В обоих случаях p и p_1 представляют вполне определенные выражения, составленные из статических спиновых и зарядовых корреляторов в СОМ и произведения трех электронных ФГ в GFA. В принципе их следовало бы непосредственно каким-то образом вычислить и сравнить с результатами подгоночной процедуры. Поскольку сделать такие расчеты пока трудно, вопрос о самосогласовании обоих подходов до конца не ясен.

Тем не менее, приближение среднего поля, включающее в себя параметр p_1 в GFA или p в СОМ, весьма содержательно, поскольку содержит эффекты статических флуктуаций. Двухполюсная ФГ этого приближения может быть использована далее для вычисления поправки к собственной энергии электрона $\Sigma(\mathbf{k}, \omega)$ от динамических флуктуаций и для расчета бозеподобных ФГ, описывающих сами эти флуктуации. Динамические поправки к $\Sigma(\mathbf{k}, \omega)$ могут быть вычислены в рамках приближения SCBA. Для вычисления бозонных ФГ (магнонов, плазмонов, дублонов) следует писать уравнения в вариационных производных, используя определения (2.20)-(2.22), в которые входят вариационные производные по флуктуирующим полям от собственно-энергетической части электрона Σ . Такой подход был использован нами ранее для модели Хаббарда в пределе $U \rightarrow \infty$ [11,15].

Другим направлением использования точных уравнений для электронной ФГ, выведенных нами, состоит в исследовании сверхпроводящего состояния в модели Хаббарда. Уравнения (3.14) для электронной ФГ включает в себя аномальные ФГ под знаком вариационных производных по полям $v^{\uparrow 2}$ и $v^{\uparrow 0}$. Как мы показали, их следует учитывать для нормальной фазы, в которой эти производные не равны нулю, даже если сами аномальные ФГ равны нулю (как в нормальной фазе). Если последнего предположения не делать, из общего матричного уравнения (3.14) можно построить уравнения модели со сверхпроводящим параметром порядка (см. работу [17]).

Третье направление – исследование магнитоупорядоченных фаз модели, например ферромагнитной. Известно, что устойчивая ферромагнитная фаза существует в модели Хаббарда при достаточно больших U . Предварительный анализ решения уравнений (5.15)-(5.17) не обнаруживает устойчивых спин-поляризованных состояний. Для их возникновения необходимо учитывать взаимом-

действие электронов с динамическими спиновыми флуктуациями, содержащимися во вкладе $\Sigma_{red}(\mathbf{k}, \omega)$ (см. по этому поводу работу [18] и ссылки в ней).

Авторы благодарят Российский фонд поддержки научных школ, грант НШ-747.2003.2.

Литература

1. *J. Hubbard*, Proc.Roy. A 276, 238 (1963).
2. *L. Roth*, Phys.Rev. 184, 451 (1969).
3. *F. Mancini, S. Marra, H. Matsumoto*, Physica C. 244, 49 (1995).
4. *A. Avella, F. Mancini, D. Villani, L. Siurakshina, V.Yu. Yushankhai*, Int. J. Mod. Phys 12, 81 (1998).
5. *F. Mancini, A. Avella*, Cond. mat /0006377 V4 (2003).
6. *W. Nolting, W. Borguel*, Phys.Rev B 39, 6962 (1989).
7. *M.C. Gutzwiller*, Phys.Rev.Lett 10, 159 (1963).
8. *A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, M.J. Rozenberg*, Rev.Mod.Phys 68, 13 (1996).
9. *S.E. Burnes*, J.Phys F 6, 1375 (1976); 7, 2673 (1977).
10. *G. Baym, L.P. Kadanoff*, Phys.Rev 124, 287 (1961).
11. *Ю.А. Изюмов, Н.И. Чащин*, ФММ 92, №5, 30 (2001); 92, №6, 5 (2001); 93, №1, 23 (2002); 94, №6, 5 (2002); 94, №6, 17 (2002).
12. *Ю.А. Изюмов, Н.И. Чащин, Д.С. Алексеев*, ФММ 97, №2 (2004).
13. *Ю.А. Изюмов, Н.И. Чащин*, ФММ 97, №3 (2004).
14. *Yu.A. Izyumov, N.I. Chaschin, V.Yu. Yushankshai*, Phys.Rev. B 65, 214425 (2002).
15. *Ю.А. Изюмов, Ю.Н. Скрыбин*, Базовые модели в квантовой теории магнетизма, Екатеринбург, Издательство УрО РАН (2002).
16. *Yu.A. Izyumov*, in "Lectures on the Physics of highly correlated electron systems VII", AIP Conference proceedings, 678pp. 181-272 (2003).
17. *N.M. Plakida, L. Anton, S. Adam, Gh. Adam*, Cond.mat /0104232.
18. *А.В. Зарубин, В.Ю. Ирхин*, ФТТ 41, 1057 (1999).

GENERATING FUNCTIONAL APPROACH TO THE HUBBARD MODEL

Yu.A. Izyumov, N.I. Chaschin, D.S. Alexeev.

Institute for Metal Physics, S.Kovalevskoi, 18, 620219 Ekaterinburg, Russia

Method of generating functional is developed for the Hubbard model in the case of strong electron correlations. The method is a generalization of the Kadanoff-Baym approach, suggested earlier for conventional fermi-systems, to highly correlated systems. The method deals with equations for electron Green's functions in terms of variational derivatives with respect to fluctuating fields. In the exact equations a mean-field approximation is suggested with taking into account the static fluctuations of charge and spin. Interrelation between this method and the method of composite operators is established. It is shown that a two-poles approximation for the electronic Green's function describes essential features of quasiparticle spectrum and its evolution when changing electron concentration n and on-site Coulomb interaction U . At half-filling ($n = 1$) at $U = U_c \approx 1.73W$ (W – width of the bare electron band) a phase transition metal-insulator occurs.

ФЕРМИ-ЖИДКОСТЬ И СИЛЬНЫЕ КОРРЕЛЯЦИИ

М.И. Каганов¹, А.В. Чубуков²

¹ *Бельмонт, Массачусетс 02478, США*

² *Университет штата Висконсин, Мэдисон, Висконсин 53706, США*

Проанализировано поведение взаимодействующих фермионов вблизи стонеровской неустойчивости. Показано, что затухание Ландау для спиновой восприимчивости является существенным возмущением вблизи квантовой критической точки и приводит к эффективной локализации задачи – фермионная собственная энергия вблизи перехода сильно зависит от частоты, но слабо зависит от импульса. Обсуждается, как ферми-жидкостный характер поведения системы постепенно исчезает вблизи перехода при $D \leq 3$. Приведены результаты для фермионной собственной энергии в критической точке.

Введение

Теория ферми-жидкости на протяжении больше 50 лет составляет основу наших представлений о поведении электронов в металлах [1-3]. Основанная на минимальном числе постулатов, она позволяет не только качественно, но и количественно описать поведение взаимодействующих электронов.

Основной постулат теории ферми-жидкости состоит в том, что включение взаимодействия между фермионами качественно не меняет структуру состояний, расположенных вблизи ферми-поверхности [1]. Строго утверждение состоит в том, что фермионы с энергиями бесконечно близкими к энергии Ферми слабо рассеиваются за счет фермион-фермионных взаимодействий. Математически это условие формулируется в виде требования, что при исчезающе малых частотах собственная энергия фермиона $\Sigma(\omega)$ должна быть действительной функцией, линейной по частоте,

$$\Sigma(\omega) = \lambda \omega . \quad (1)$$

Мнимая часть собственной энергии, ответственная за рассеяние, приводящее к переходам из одного состояния в другие (и, тем самым, приводящее к конечности времени жизни фермиона в данном состоянии), должна быть меньше чем $\Sigma'(\omega)$, т.е. должна убывать как более высокая степень частоты:

$$\Sigma''(\omega) \propto \omega^{1+a} , \quad a > 0 . \quad (2)$$

Условия (1) и (2) означают, что при малых частотах основной эффект взаимодействия – сдвиг уровней, пропорциональный их отклонению от

Ферми-жидкость и сильные корреляции

ферми-поверхности. Сами же уровни остаются неизменными во времени, т.е. не расплываются. На языке функции Грина условия (1), (2) означают, что в пределе малых частот ω и малых отклонений импульса $\mathbf{k}$ от фермиевского $\mathbf{k}_F$ ($\|\mathbf{k}| - |\mathbf{k}_F|\| \ll |\mathbf{k}_F|$) функция Грина для взаимодействующих фермионов имеет такой же вид, как и для невзаимодействующих фермионов, отличаясь лишь перенормировкой фермиевской скорости и общим множителем, так называемым z -фактором:

$$\sigma(k, \omega) = \frac{z}{\omega - v_F^* (|\mathbf{k}| - k_F) + i\delta \operatorname{sgn} \omega}, \quad (3)$$

где $v_F^* = k_F / m^*$, а m^* есть эффективная масса [1-3].

Так как в пределе малых энергий эффект взаимодействия сводится к перенормировке коэффициентов, то термодинамические характеристики ферми-систем, описывающие реакцию системы на приложенное малое внешнее возмущение (например, температура или магнитное поле), должны иметь такой же функциональный вид, как и для свободных фермионов. Это, в частности, означает, что теплоемкость ферми-системы линейна по температуре

$$C(T) = \gamma T, \quad (4)$$

а статическая магнитная восприимчивость заряженных фермионов $\chi(T)$ в пределе нулевой температуры сводится к константе.

$$\lim_{T \rightarrow 0} \chi(T) = \chi(0) = \text{const}. \quad (5)$$

Коэффициент γ отличается от своего значения для свободных фермионов $\gamma_{\text{free}} = mk_F/3$ (в трехмерном случае) только тем, что вместо m в него входит эффективная масса m^* [1-3]

$$\gamma = \gamma_{\text{free}} \frac{m^*}{m}. \quad (6)$$

Постоянное значение восприимчивости также отличается от результата для свободных фермионов постоянным множителем, что позволяет ввести эффективный магнитный момент фермиона.

Линейная по температуре теплоемкость и постоянная магнитная восприимчивость – две фундаментальные характеристики ферми-жидкости при любом числе измерений.

Теория ферми-жидкости была создана Ландау для описания свойств жидкого ^3He при низких температурах [1]. После открытия сверхтекучести ^3He выяснилось, что теория [1] не может быть использована при сверхнизких

(милликельвиновских) температурах, однако имеется относительно широкая область температур, где теория Ландау применима. Использование теории ферми-жидкости при описании свойств нормальных металлов потребовало учета особенностей спектра электронов проводимости.

Традиционно электронная теория металлов исходила из предположения о ферми-газе электронов проводимости, отличие которого от газа свободных электронов лишь в законе дисперсии $\varepsilon = \varepsilon(\mathbf{p})$. Зависимость энергии ε от квазиимпульса $\mathbf{p}$, как результат одного из вариантов зонной теории, может столь существенно отличаться от $p^2/2m$, что приводит к вычурным поверхностям Ферми (см. [4а]) и делает актуальной обратную задачу – определение формы поверхности Ферми $\varepsilon(\mathbf{p}) = \varepsilon_F$ и скоростей электронов $\mathbf{v}_F$ на ней по экспериментальным данным.

В 50-е годы прошлого века разрабатывалась (в основном И. Лифшицем и его учениками, см. [5]) электронная теория металлов, в которой основное внимание уделялось структурно-чувствительным явлениям (гальвано-магнитные явления, эффект де Гааза–ван Альфена и др.). В дальнейшем это направление получило наименование фермиологии. За прошедшие полвека фермиология позволила определить энергетический спектр почти всех металлов.

Формально теория структурно-чувствительных явлений строилась, используя представление об электронах проводимости как о ферми-газе заряженных фермионов. Сказанное выше о сходстве структуры состояний, близких к поверхности Ферми в ферми-газе и в ферми-жидкости, а также непосредственный анализ (см. [5]) показывает, что практически все фермиологические результаты можно трактовать как относящиеся к истинному (жидкостному) энергетическому спектру металлов.

В металлах есть явления, которые не имеют аналога в газе свободных электронов, т.к. они связаны с существованием ферми-поверхностей сложной топологии (многосвязных, открытых). Казалось бы, при построении теории таких явлений могли быть обнаружены существенные отличия при описании электронов проводимости как ферми-газа и как ферми-жидкости. Это не так. Характерный пример – электронный топологический переход в нормальном металле¹ (или переход 2½-го рода согласно терминологии Эренфеста), обусловленный изменением связности поверхности Ферми. В точке перехода даже такое характерное свойство ферми-системы как линейная зависимость теплоемкости C от температуры T претерпевает изменение ($C \propto T^{3/2}$). Специальный анализ [6] однако показал, что характер

¹ См. Ya. Blanter, M. Kaganov, A. Pantsulaya, A. Varlamov. *Phys.Rep.* V.245, N4, pp. 159-257 (1994). В обзоре – подробная библиография.

перехода и основные закономерности в ферми-жидкости остаются теми же, что и в ферми-газе.

В теории ферми-жидкости важную роль играет перенормировка эффективной массы, в частности обязанная взаимодействию электронов с фотонами (см. ниже). Подробный анализ [6] показал, что усложнение закона дисперсии электронов проводимости и фононов (например, существование оптических ветвей фононного спектра в неоднoатомных металлах) может привести к количественным, но не качественным изменениям.

Как будет видно, утверждения настоящей статьи не очень чувствительны к анизотропии электронного спектра. Используя принятые в фермиологии геометрические представления, все полученные здесь выводы могут быть обобщены на случай поверхностей Ферми произвольной формы. Процитированная выше статья [6] – пример подобного обобщения.

Вернемся к описанию характерных черт ферми-жидкости. Структура фермионной собственной энергии и, соответственно, форма поправок к основным формулам, описывающим ферми-жидкость, вообще говоря, зависит от размерности. Если бы полное (в смысле, полностью перенормированное) взаимодействие между фермионами было короткодействующим, то естественно ожидать, что фермионная собственная энергия раскладывается по целочисленным степеням частоты. Так как собственная энергия обязана быть мнимой на мнимой (мацубаровской) оси, такое разложение должно иметь вид

$$\begin{aligned} \sum'(\omega) &= \lambda\omega + a\omega^3 + b\omega^5 + \dots \\ \sum''(\omega) &= c\omega^2 + d\omega^4 + \dots \end{aligned} \quad (7)$$

При такой собственной энергии, теплоемкость и магнитная восприимчивость – аналитические функции по температуре T и по импульсу Q , т.е. представляются в виде рядов:

$$\begin{aligned} C(T) &= \gamma T + \alpha_1 T^3 + \alpha_2 T^5 + \dots \\ \chi(Q, T) &= \chi(0, 0) + \alpha_3 T^2 + \alpha_4 Q^2 + \dots \end{aligned} \quad (8)$$

В действительности это не так. Дело в том, что эффективное взаимодействие между фермионами всегда имеет дальнедействующую компоненту, убывающую с расстоянием r степенным образом, а не экспоненциально. Происходит это из-за сингулярного (аномального) характера частично-дырочного поляризационного оператора, отвечающего за экранировку взаимодействия между фермионами [4]. Этот эффект хорошо известен в теории ферми-жидкости [3]. Дальнедействие возникает по двум причинам. Во-первых, статический частично-дырочный поляризационный оператор $\Pi(k)$ сингулярен при $p = 2\rho_F$ (коновская аномалия [8]), и это

приводит к фриделевским осцилляциям эффективного взаимодействия на больших расстояниях. В трехмерном случае

$$\Gamma_{\text{eff}}(r) \propto \frac{\cos(2k_F r)}{r^3}. \quad (9)$$

Заметим, что эти осцилляции приводят к эффективному притяжению между фермионами в каналах с ненулевым орбитальным моментом (эффект Кона-Латтинжера [9]) и играют роль в сверхтекучести ^3He [10].

Во-вторых, динамический частично-дырочный оператор неаналитичен по импульсу при малых q [2,3]:

$$\Pi(q, \omega_m) \propto \frac{\omega_m}{|q|} (v_F q \mp \omega_m) \quad (10)$$

(ω_m – мацубаровская частота). Это тоже приводит к степенному поведению динамического взаимодействия в трехмерном случае

$$\Gamma_{\text{eff}}(\omega, r) \propto \frac{|\omega_m|}{r^2}. \quad (11)$$

Оба эффекта влияют на собственную энергию фермионов и приводят к тому, что разложение Σ по частоте оказывается неаналитичным: кроме (7), появляются также члены вида ω^D [11]. При произвольном не целом значении размерности D такие члены присутствуют как в Σ' , так и в Σ'' . При целочисленных размерностях есть дополнительные логарифмы. Так при $D = 3$ сингулярные вклады ведут себя, как

$$\Sigma' \propto \omega^3 \log \omega, \quad \Sigma'' \propto \omega^3. \quad (12)$$

При $D = 2$

$$\Sigma' \propto \omega^2, \quad \Sigma'' \propto \omega^2 \log \omega. \quad (13)$$

При $D = 1$

$$\Sigma' \propto \omega \log \omega, \quad \Sigma'' \propto \omega. \quad (14)$$

Для Σ' сингулярный вклад при всех $D > 1$ есть малая поправка к главному члену. В соответствии с общими положениями это означает, что теория ферми-жидкости справедлива при всех $D > 1$. В одномерном случае сингулярная поправка превосходит "основной" $O(\omega)$ член. Это – индикатор того, что при $D = 1$ теория ферми-жидкости неверна.

В то же время, для $\Sigma''(\omega)$, регулярный член $O(\omega^2)$ доминирует только, если $D > 2$, а если $1 < D < 2$, то главный вклад в Σ'' вносит аномальный ω^D член. В частности, это означает, что неправильно отождествлять теорию ферми-жидкости с наличием $\Sigma'' \propto \omega^2$ (и, как следствие, с сопротивлением

$\rho(T) \propto T^2$). Такое поведение осуществляется только при $D > 2$, а теория ферми-жидкости справедлива до $D = 1$.

Сингулярные поправки к $\Sigma(\omega)$ приводят к появлению сингулярных поправок к восприимчивости и теплоемкости. Для теплоемкости

$$C_{\text{синг}}(T) \propto T^D \quad (15)$$

с дополнительной логарифмической зависимостью при $D = 3$, где

$$C_{\text{синг}}(T) \propto T^3 \log T. \quad (16)$$

Для восприимчивости

$$\chi_{\text{синг}}(T, Q) \propto T^{D-1}, Q^{D-1} \quad (17)$$

с дополнительной логарифмической зависимостью по Q (не по T) в трехмерном случае

$$\chi_{\text{синг}} \propto Q^2 \log Q. \quad (18)$$

Анализ сингулярных поправок к ферми-жидкости имеет длинную историю. По-видимому, впервые неаналитичная поправка к теплоемкости вида $T^3 \log T$ при $D = 3$ была получена Элиашбергом в 1963 г. [12]. Кто первый получил поправку $T^3 \log T$ к электронной теплоемкости за счет электрон-электронного взаимодействия, авторам неизвестно. Но уже с середины 60-х годов этот результат стал общеизвестным.

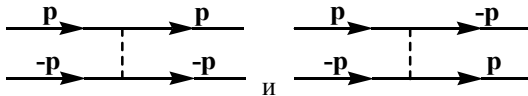
Дальнейшее развитие история получила при анализе данных по теплоемкости в ^3He . В 1966 году Дж. Витли и его соавторы установили [13], что аналитическое разложение C/T по степеням $(T/E_F)^2$ несовместимо с их данными. На основании их данных Андерсон [14] высказал предположение, что поправки к ферми-жидкости могут быть неаналитичны по температуре. Дониак и Энгельсберг [15] вычислили поправку к теплоемкости в рамках парамагнитной модели для ^3He и опять же получили $T^3 \log T$. Позже этот же вопрос обсуждался в работах [16-19].

В двумерном случае $\delta C(T) \propto T^2$ было получено в работах [20-21]. Для электрон-электронного взаимодействия член, пропорциональный T^2 , был вычислен с соответствующим коэффициентом в работе [22].

С поправками к спиновой восприимчивости дело обстоит еще интереснее. Впервые эти поправки были вычислены в работе [18] без учета $2p_F$ – эффектов. Авторы [18] получили аналитические поправки по температуре и по импульсу. После этого, в течение некоторого времени принято было считать, что сингулярные поправки к ферми-жидкостным формулам существуют только для теплоемкости.

Ситуация изменилась после работы [23], в которой поправки к спиновой восприимчивости были вычислены аккуратно, с учетом двух сингулярностей в поляризационном операторе (при нулевой передаче импульса и при передаче, равной $2p_F$). Авторы [23] получили $\delta\chi_s(T) \propto T^2$, $\delta\chi_s(Q) \propto Q^2 \log Q$ – аналитическую поправку по температуре и неаналитическую поправку по импульсу. Баранов, Каган, Маренко [24] и, позже, Читов и Миллис [25] вычислили температурную поправку к спиновой восприимчивости в двумерном случае. Они получили $\delta\chi_s(T) \propto T$, что соответствует (17). Маслов и Чубуков [11] вычислили в двумерном случае $\delta\chi_s(Q)$ и получили $\delta\chi_s(Q) \propto |Q|$, что тоже находится в согласии с (17). В этой же работе было установлено, почему ожидаемая логарифмическая зависимость от температуры не возникает в трехмерном случае. Алейнер, Зала и Нарожный [26] показали, что сингулярность поляризационного оператора приводит к неаналитичности температурной зависимости проводимости в грязной ферми-жидкости в баллистическом режиме. Вопрос о неаналитических поправках к ферми-жидкости далеко не исчерпан и продолжает обрастать новыми подробностями [27].

Интересно отметить, что, как показывает детальный расчет, сингулярные поправки к ферми-жидкостным формулам происходят всего от двух вершин с нулевым суммарным импульсом и переданным импульсом либо 0, либо $2p_F$:



С формальной точки зрения обе эти вершины отвечают рассеянию назад (вершина, отвечающая рассеянию вперед, имела бы 4 одинаковых импульса). Наиболее существенно, однако, что обе вершины одномерные в том смысле, что все импульсы расположены вдоль одной оси. Этот факт достаточно знаменателен, так как именно поправки, обязанные сингулярности поляризационного оператора разрушают ферми-жидкость в одномерном случае. Как мы видим, "одномерные" взаимодействия проявляются и в системах более высокой размерности, и отвечают за неаналитичные поправки к ферми-жидкостным формулам.

Содержательная часть настоящей публикации в последующих параграфах. О чем они? Будет показано, каким образом неаналитичные поправки к ферми-жидкостным формулам могут доминировать в сравнении с регулярными членами, даже когда размерность пространства $D > 1$ (особый интерес представляют, естественно, размерности $D = 2$ и $D = 3$). Когда это происходит, то обычно говорят, что в системе развиваются сильные корреляции. Будет показано, что при $D \leq 3$ это происходит тогда, когда система приближается к так называемой неустойчивости Померанчука, при которой один из параметров

Ландау становится равным -1 [3]. Происходит это, если в системе возникает неустойчивость по отношению к волнам зарядовой или спиновой плотности. Для определенности будет рассмотрено поведение ферми-системы в окрестности ферромагнитной неустойчивости, приводящей к волне спиновой плотности с $q=0$. Будет видно, что неаналитические члены в собственной энергии "взрываются" вблизи неустойчивости при размерности $D \leq 3$. Будет разъяснено, почему это происходит, и как можно описать возникающие сильные корреляции в системе. Контролируемое теоретическое описание возможно в ситуации, когда сильные корреляции целиком обязаны приближению к неустойчивости Померанчука, а вдали от перехода корреляции слабые.

На современном языке неустойчивость Померанчука принято называть квантовым фазовым переходом [28]. Исследование квантовых фазовых переходов в последние годы быстро развивается. С одной стороны, есть очень существенный прогресс в понимании того, как устроены квантовые переходы в чисто магнитных системах (т.е. в системах локализованных спинов [29]). С другой стороны, есть существенный прогресс и в экспериментальном изучении отклонений от ферми-жидкостной теории при приближении к квантовой критической точке в зонных магнетиках. Наиболее характерно такое поведение проявляется в соединениях с тяжелыми фермионами, таких как $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ [30], YbRh_2Si_2 [31], $\text{Ce}(\text{Co}, \text{Rb}, \text{Ir})\text{In}_5$ [32], CePd_2Si_2 [33], CeIn_3 [34], UPt_3 [35] и других. Достаточно подробный обзор современных представлений о квантово-критическом поведении в соединениях с тяжелыми фермионами содержится в [36].

Вернемся к нашему рассмотрению. Количественно, слабость флуктуаций вдали от перехода выражается в малости отношения взаимодействия g и энергии Ферми $E_F \propto v_F / a$ (в статье принято, что $\hbar = 1$)

$$\frac{g}{v_F / a} \ll 1. \quad (19)$$

Одновременно, вблизи перехода, магнитная корреляционная длина ξ велика по сравнению с межатомным расстоянием a . Будет показано, что в такой ситуации сингулярные (неаналитические) поправки к ферми-жидкостным формулам определяются параметром

$$\frac{g}{v_F / a} \cdot \left(\frac{\xi}{a} \right)^{3-D}, \quad (20)$$

для $D < 3$ [37] и

$$\frac{g}{v_F / a} \cdot \log \left(\frac{\xi}{a} \right) \quad (21)$$

при $D = 3$ [38].

Из (20) и (21) видно, что при $\xi \rightarrow \infty$ сингулярные поправки оказываются велики, т.е. система не может рассматриваться как система слабо взаимодействующих квазичастиц. При $D > 3$ сингулярные поправки малы в меру (19) даже если $\xi = \infty$.

Структура дальнейшей части статьи следующая. Сначала обсудим эффективную спин-фермионную модель, применяемую вблизи магнитного перехода, и покажем, как устроена собственная энергия, когда $\xi \sim a$, т.е. условия (19) и (20)-(21) не различаются. Будет показано, что член, ответственный за перенормировку эффективной массы, представляет собой аномальный вклад в собственную энергию и обязан своим происхождением той же сингулярности в частично-дырочной петле, что приводит к неаналитической поправке к теплоемкости ферми-жидкости. Будет показано, что сингулярный вклад в собственную энергию "привязан" к ферми-поверхности. Будет продемонстрирована эквивалентность диаграммного подхода теории ферми-жидкости Ландау. Затем будет показано, что структура сингулярного члена меняется, когда ξ начинает возрастать. При $\xi \approx a$, сингулярный член в собственной энергии зависит от импульса, но не от частоты, т.е. $\Sigma(k, \omega) \approx \Sigma(k)$. По мере увеличения ξ зависимость от импульса уступает место частотной зависимости, и, когда система входит в режим сильной связи $\frac{g}{v_F/a} \cdot \left(\frac{\xi}{a}\right)^{3-D} \geq 1$, сингулярная собственная энергия уже

зависит только от частоты, т.е. $\Sigma(k, \omega) \approx \Sigma(\omega)$. Регулярная часть собственной энергии по-прежнему содержит зависимость от импульса, но эта зависимость мала по параметру (19). Будет видно, что задача с большой $\Sigma(\omega)$ и малой $\Sigma(k)$ решается точно (в пренебрежении регулярными поправками), так как вершинные поправки тоже оказываются малыми по параметру (19). По существу задача оказывается математически почти эквивалентной задаче об электрон-фононном взаимодействии, рассмотренной Мигдалом [40] и Элиашбергом [36]. В случае, который рассмотрен здесь, роль константы связи λ

играет $\frac{g}{v_F/a} \cdot \left(\frac{\xi}{a}\right)^{3-D}$, а роль малого параметра $\left(\frac{m_{el}}{m_{ion}}\right)^{1/2}$ играет $\left(\frac{a}{\xi}\right)^{3-D}$. Таким образом, $\frac{g}{v_F/a} \equiv \lambda \left(\frac{a}{\xi}\right)^{3-D} \gg 1$ играет ту же роль что и $\lambda \left(\frac{m_{el}}{m_{ion}}\right)^{1/2} \gg 1$ в случае электрон-фононного взаимодействия.

1. Собственная энергия в теории ферми-жидкости²

То, что теплоемкость и восприимчивость системы взаимодействующих фермионов сохраняют такую же форму как и для свободных фермионов, не

² Параграфы 1 и 2 написаны А.В.Чубуковым

вызывает особых вопросов, поскольку вполне естественно ожидать, что за реакцию на приложение малого магнитного поля или на изменение температуры ответственны фермионы, находящиеся в непосредственной близости к ферми-поверхности, для которых выражение (3) справедливо. Однако, теория ферми-жидкости этим не ограничивается. Утверждается, что перенормировка массы определяется взаимодействием между фермионами из непосредственной окрестности ферми-поверхности [1-3]. На первый взгляд, это кажется удивительным, ибо поправка к массе происходит из действительной части собственной энергии, для вычисления которой не нужен закон сохранения.

Вывод формулы для эффективной массы на основании галилеевской инвариантности приведен в [1-3]. Покажем, как эту формулу можно получить с помощью теории возмущений. Приведенный ниже вывод – первый шаг к рассмотрению сильной связи.

1а. Спин-фермионная модель

Рассмотрим систему фермионов, взаимодействующих посредством обмена флуктуациями некоторого бозонного поля. Бозонами могут быть либо фононы, либо коллективные моды электронов [41]. Для определенности, мы рассмотрим взаимодействия с коллективными ферромагнитными флуктуациями (парамагнонами). Задача о взаимодействии с антиферромагнитными флуктуациями рассмотрена в [41]. Взаимодействие фермионов с коллективными спиновыми флуктуациями описывается спин-фермионным гамильтонианом [41].

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{ferm}} + \mathcal{H}_{\text{spin}} + \mathcal{H}_{\text{int}} . \quad (1.1)$$

В этой формуле $\mathcal{H}_{\text{ferm}}$ описывает свободные фермионы:

$$\mathcal{H}_{\text{ferm}} = \sum_{k, \alpha} v_F (k - k_F) c_{k\alpha}^+ c_{k\alpha} , \quad (1.2)$$

α – спиновый индекс. $\mathcal{H}_{\text{spin}}$ описывает низкоэнергетические спиновые степени свободы:

$$\mathcal{H}_{\text{spin}} = \sum_q \chi(q) \mathbf{S}_q \mathbf{S}_{-q} , \quad (1.3)$$

где $\chi(q)$ – статическая спиновая восприимчивость.

Поскольку нас в дальнейшем будем интересовать ферромагнитный переход, мы предположим, что статическая восприимчивость имеет максимум при $q = 0$. Далее предположим, что $\chi^{-1}(q)$ – аналитическая функция при малых q , т.е.

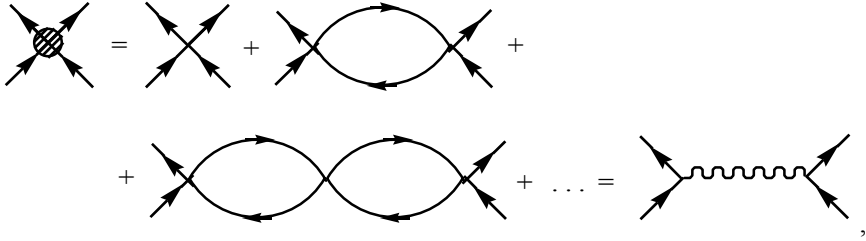
$$\chi(q) = \frac{\chi_0}{q^2 + \xi^{-2} + O(q^4)} . \quad (1.3')$$

В таком определении ξ есть магнитная корреляционная длина ($\chi(r) = \int \chi(q) e^{iqr} \propto e^{-r/\xi}$). Строго говоря, формула (1.3') верна только при больших ξ , но качественно ее можно, разумеется, применять вплоть до $\xi \sim a$ (a – межатомное расстояние).

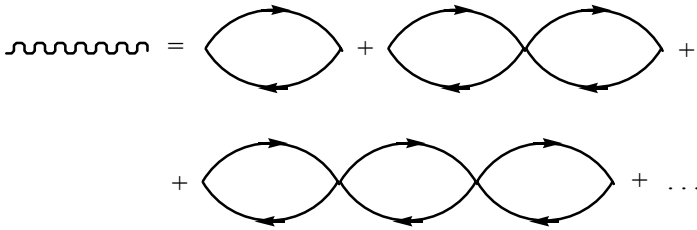
Наконец, $\mathcal{H}_{\text{int}}$ описывает взаимодействия между низкоэнергетическими фермионами и коллективными спиновыми флуктуациями.

$$\mathcal{H}_{\text{int}} = g \sum_{k,q} \mathbf{S}_q c_{k,\alpha}^+ \boldsymbol{\sigma}_{\alpha,\beta} c_{k+q,\beta}. \quad (1.4)$$

Обоснование спин-фермионной модели требует аккуратности. Спиновые коллективные переменные, конечно, не являются независимыми (от фермионов) степенями свободы, а представляют собой ряды из частично-дырочных пар. В простейшем приближении случайных фаз (RPA) введение коллективных степеней свободы как дополнительных бозонных мод на диаграммном языке выглядит следующим образом:



где



В явном виде:

$$\chi(q, \omega) = \frac{\chi_0(q, \omega)}{1 - u \chi_0(q, \omega)}, \quad (1.5)$$

где u есть затравочное электрон-электронное взаимодействие. Как видно из рисунка, в RPA-приближении $g = u$. За пределами RPA-приближения такого равенства уже нет.

Магнитная восприимчивость (1.5) содержит как пространственную, так и частотную дисперсии. Введение спин-фермионной модели (описываемой гамильтонианом (1.1)) может быть оправдано, если пространственная и частотная дисперсии в $\chi(q, \omega)$ приходят из разных частей фазового пространства фермионов [41]. Частотная часть требует законов сохранения, и определяется фермионами с энергиями близкими к ω . Статическая восприимчивость, с другой стороны, законов сохранения не требует, и по сему определяется фермионами с энергиями порядка E_F , или, более аккуратно, порядка ширины фермионной зоны W . Мы увидим позднее, что в сильной связи характерные бозонные частоты, дающие максимальный вклад в фермионную собственную энергию, оказываются порядка константы взаимодействия g . Собственно, когда g мало по сравнению с W , разделение энергетических масштабов позволяет проинтегрировать высокоэнергетические фермионные моды, пренебрегая при этом частотной зависимостью восприимчивости. Динамическая часть восприимчивости затем должна вычисляться из эффективного гамильтониана наравне с фермионной собственной энергией. В этом основа вывода эффективного гамильтониана (1.1) – (1.3).

Отдельный вопрос – как сделать так, чтобы с одной стороны g было бы значительно меньше W , а с другой стороны система была бы близка к магнитному переходу. Для короткодействия, в приближении RPA магнитный переход происходит при $u = g \sim W$, т.е., удовлетворить обоим условиям одновременно нельзя. Однако, когда характерный радиус взаимодействия значительно больше межатомного (эффективное дальное действие), малость g/W приближению к точке перехода не мешает, так как магнитная неустойчивость определяется условием $g\alpha/W = 1$, где α ($\alpha \ll 1$) есть отношение радиуса взаимодействия к межатомному расстоянию.

Совместить малость g/W и $\xi \rightarrow \infty$ можно также, выйдя за пределы RPA и рассматривая ситуацию, когда взаимодействие зависит от частоты, т.е. $g = g(\omega)$. В этом случае, магнитная неустойчивость определяется условием $g(\omega \sim W) \sim W$, тогда как разделение динамических и статических вкладов требует, чтобы на малых энергиях $g(\omega \ll W) \ll W$.

Небольшой комментарий – утверждение, что интегрирование по энергиям порядка W дает только $\chi(q)$ не вполне точно. Интегрирование по высокоэнергетическим фермионам в частично-дырочной петле в общем случае дает частотно зависящие члены в $\chi(q, \omega)$ в виде аналитического ряда по степеням ω^2 . Такие члены, однако, оказываются пренебрежимо малыми по сравнению с линейным по частоте членом, происходящим от малых

частот (затухание Ландау). Для простоты мы пренебрежем аналитическими по частоте вкладами в $\chi(q, \omega)$.

Приведенное рассуждение означает: во-первых, описание на языке взаимодействия через коллективные бозонные моды справедливо, если

$$g/W \propto \frac{g}{v_F/a} \ll 1 \quad (1.6)$$

(a – межатомное расстояние); во-вторых, модель справедлива только на энергиях, меньших некоторой величины энергетического обрезания $\Lambda \leq W$. Выбор Λ в достаточной степени произволен. Важно лишь, что на частотах, меньших Λ и, соответственно при импульсах $\|\mathbf{k}\| - \|\mathbf{k}_F\| \leq |\Lambda/v_F|$ фермионы должны рассматриваться как низко энергетические. Практически это означает, что их дисперсия может быть линеаризована по отклонениям от ферми-поверхности.

1б. Фермионная собственная энергия

Теперь мы можем заняться вычислением фермионной собственной энергии. Из нее в дальнейшем будет получена перенормировка массы. В низшем (втором) порядке по взаимодействию, диаграмма для собственной энергии имеет вид

$$\Sigma(\mathbf{k}, \omega) = \frac{\text{diagram}}{\mathbf{k}+\mathbf{q}, \omega+\Omega}$$

В аналитическом виде

$$\Sigma(k, \omega) = 3g^2 \int \frac{d^d k}{(2\pi)^d} T \sum_{\omega} \chi(q) G_{k+q, \omega+\Omega}^{(0)}, \quad (1.7)$$

где

$$G_{k, \omega}^{(0)} = \frac{1}{i\omega - v_F(k - k_F)}. \quad (1.8)$$

Напомним, что полная функция Грина связана с собственной энергией следующим образом:

$$G^{-1}(k, \omega) = (\sigma^{(0)}(k, \omega))^{-1} + \Sigma(k, \omega) \quad (1.9)$$

Поскольку нас интересуют конечные частоты и конечные отклонения от ферми-поверхности, вычисление собственной энергии удобно производить, предварительно вычтя из нее $\Sigma(k_F, 0)$. Постоянная $\Sigma(k_F, 0)$ обеспечивает перенормировку химического потенциала, и сама по себе

Ферми-жидкость и сильные корреляции

интереса не представляет. Подставляя (1.8) в (1.7) и раскладывая ε_{k+q} как $\varepsilon_{k+q} = v_F(\Delta k + q \cos \theta)$, где $\Delta k = k - k_F$, а θ есть угол между $\mathbf{k}$ и $\mathbf{q}$, получаем:

$$\Sigma(k, \omega) = -3g^2 \cdot \int \frac{d^D q d\Omega}{(2\pi)^{D+1}} \chi(q) \cdot \frac{i\omega - v_F \Delta k}{[\omega + \Omega + iv_F(\Delta k + q \cos \theta)][\Omega + iv_F q \cos \theta]} \equiv, \quad (1.10)$$

$$\equiv (i\omega - v_F \Delta k) I(\Delta k, \omega)$$

где

$$I(\Delta k, \omega) = -3g^2 \cdot \int \frac{d^D q d\Omega}{(2\pi)^{D+1}} \chi(q) \cdot \frac{1}{[\omega + \Omega + iv_F(\Delta k + q \cos \theta)][\Omega + iv_F q \cos \theta]}. \quad (1.11)$$

Из (1.10) видно, что собственная энергия пропорциональна первым степеням свободы ω и Δk . Это, естественно означает, что поправки меняют коэффициенты в функции Грина, но не ее функциональную форму, в полном соответствии с основной идеей ферми-жидкости. Кажется естественным положить $\Delta k = \omega = 0$ в $I(\Delta k, \omega)$ в формуле (1.10). Однако из выражения (1.11) видно, что при $\Delta k = 0$ интеграл по частоте обращается в нуль из-за наличия двух полюсов в одной и той же полуплоскости Ω . Поэтому вычислим (1.11) не обращая в нуль Δk . Удобно обозначить $q \cos \theta = q_1$. Тогда $\int d^d q = \int d^{d-1} q_\perp dq_1$.

Интегрируя по частоте при конечном Δk , мы замечаем, что существует узкий интервал значений q_1 , где q_1 и $q_1 + \Delta k$ имеют разные знаки, соответственно полюса подынтегрального выражения по частотам находятся в разных полуплоскостях. Пусть для определенности $\Delta k > 0$. Тогда нужный для нас интервал это

$$-\Delta k < q_1 < 0. \quad (1.12)$$

При таких q_1 интеграл по частоте дает

$$\int \frac{d\Omega}{2\pi} \frac{1}{\omega + \Omega + iv_F(\Delta k + q_1)} \frac{1}{\Omega + iv_F q_1} =$$

$$= \frac{2\pi i}{2\pi} \frac{1}{\omega + iv_F \Delta k} = -\frac{1}{i\omega - v_F \Delta k}. \quad (1.13)$$

Интегрируя затем по q_1 и по $q_\perp$ и замечая, что, поскольку $|q_1| < \Delta k$, значение $\chi(q_\perp, q_1)$ может быть заменено на $\chi(q_\perp, 0)$, мы получим

$$I(\Delta k, \omega) = + \frac{3g^2}{(2\pi)^d} \left[\int \chi(q_\perp) d^{d-1} q_\perp \right] \frac{\Delta k}{i\omega - v_F \Delta k}. \quad (1.14)$$

Обозначив

$$\frac{3g^2}{(2\pi)^d v_F} \int \chi(q_\perp) d^{d-1} q_\perp = \lambda, \quad (1.15)$$

получаем

$$I(\Delta k, \omega) = \lambda \frac{v_F \Delta k}{i\omega - v_F \Delta k} \quad (1.16)$$

и, соответственно,

$$\Sigma(k, \omega) = \lambda v_F \Delta k. \quad (1.17)$$

Подставляя (1.17) в (1.9) имеем

$$\sigma^{-1}(k, \omega) = i\omega - v_F \Delta k + \lambda v_F \Delta k \equiv i\omega - v_F^* \Delta k,$$

где $v_F^* = \frac{p_F}{m}$, и

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{m} (1 - \lambda). \quad (1.18)$$

Анализируя вывод выражения (1.18), видим, что интеграл, дающий вклад в перенормировку фермионной массы, действительно связан с интегрированием по области близкой к ферми-поверхности, (при $|\Omega| \sim \omega$ и $|\mathbf{q}_\perp| \leq \Delta k$). Области, далекие от ферми-поверхности, вклад не вносят. С математической точки зрения интеграл для перенормировки эффективной массы есть типичный пример аномалии [42]: $I(0,0)=0$, но подынтегральное выражение содержит двойной полюс вплоть до произвольно малых значений Δq и Ω . При конечном Δk двойной полюс расщепляется, и малость области интегрирования по импульсу ($|\mathbf{q}_\perp| < \Delta k$) компенсируется малостью знаменателя в этой области, т.к. он (знаменатель) есть разность между двумя полюсами, расщепленными за счет тех же Δk и ω . В результате возникает комбинация $I(\Delta k, \omega) \propto \frac{\Delta k}{i\omega - v_F \Delta k}$,

хорошо знакомая как выражение для частично-дырочной петли при малых переданных частотах и импульсах [3]. Таким образом, поправка к массе происходит исключительно за счет аномального вклада в свободную энергию. Аналогичное рассмотрение можно провести для спиновой восприимчивости и убедиться, что перенормировка $\chi(Q=0, T=0)$ по сравнению с результатом для свободных фермионов происходит за счет "аномальных" членов, связанных с

Ферми-жидкость и сильные корреляции

раздвижкой полюсов вблизи ферми-поверхности. С этой точки зрения теория ферми-жидкости Ландау – это учет аномалий.

Дальше обратим внимание, что формула (1.17) – это полный (во втором порядке теории возмущений) результат для фермионной собственной энергии. Но в этой формуле полностью отсутствует зависимость от частоты, т.е.

$$\Sigma(k, \omega) \approx \Sigma(k). \quad (1.19)$$

При такой собственной энергии фермионная масса перенормируется, но z -фактор остается равным $z = 1$. Иными словами

$$G(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{i\omega - v_F^*(k - k_F)}. \quad (1.20)$$

Откуда берется перенормировка z -фактора? Для ответа на этот вопрос надо вернуться к формуле (1.10). Было выяснено, что $I(\Delta k, \omega) = 0$ из-за двойного полюса. Представим себе теперь, что магнитная восприимчивость содержит некую частотную зависимость, например, в виде регулярных членов в разложении по частоте. Для простоты изложения представим ненадолго, что

$$\chi(q) \rightarrow \chi(q, \Omega) = \frac{\chi_0}{q^2 + \xi^{-2} + \left(\frac{\Omega}{v_s}\right)^2}. \quad (1.21)$$

Тогда интеграл по частоте Ω наряду с полюсами при малых значениях $\Omega \approx iv_F \Delta k$, имеет те же полюса при гораздо больших значениях $\Omega = \pm iv_s \sqrt{q^2 + \xi^{-2}}$. Существенно, что эти дополнительные полюса присутствуют в обеих полуплоскостях, так что даже при строго равных нулю Δk и ω , $I(0,0)$ оказывается конечным.

Поскольку речь не идет о раздвижке полюсов, $I(0,0)$ определяется областями в общем случае далекими от ферми-поверхности. В частности, при $\xi = 0$ полюс в спиновой восприимчивости расположен на $|\Omega| \sim v_s \xi^{-1} \sim v_F \xi^{-1} v_F/a \sim E_F$, т.е. на очень больших энергиях. При конечной величине $I(0,0)$, собственная энергия содержит два вклада. Первый, регулярный $\Sigma = \Sigma_n$, происходит от областей вне ферми-поверхности, и дает

$$\Sigma_n = (i\omega - v_F \Delta k) I(0,0). \quad (1.22)$$

Второй, аномальный $\Sigma = \Sigma_{an}$, "привязан" к ферми-поверхности, и дается выражением (1.17):

$$\Sigma_{an} = \lambda v_F \Delta k. \quad (1.22')$$

Подставляя оба члена в уравнение для $G(k, \omega)$, мы находим, что формула для эффективной массы не меняется, но появляется поправка к z -фактору:

$$\frac{1}{z} = 1 + I(0,0) . \quad (1.23)$$

В результате, перенормированная функция Грина приобретает вид, задаваемый формулой (3). Приведенное рассмотрение нетрудно обобщить на случай произвольного взаимодействия. При произвольном значении λ диаграмма для собственной энергии имеет вид:

$$\Sigma = \text{[Diagram: A horizontal line with a wavy line above it and two shaded triangles at the ends]} ,$$

где жирная линия есть полная функция Грина, жирная волнистая линия есть полная динамическая спиновая восприимчивость, а заштрихованные треугольники представляют собой полные вершины. Казалось бы, рассмотрение сильно усложняется, но это не так. До тех пор, пока полная функция Грина вблизи ферми-поверхности имеет вид (3), т.е. качественно не отличается от выражения для свободных фермионов, собственная энергия по-прежнему имеет аномальный член, который связан с интегрированием по частотам, близким к нулю, и $|\mathbf{k} + \mathbf{q}| \approx k_F$. Для вычисления этого вклада вершины можно брать при $\omega = 0$, $k = k_F$ и $q_{\parallel} = 0$. Зависимость от $q_{\perp}$ в вершинах в общем случае остается, но интеграл по $d^{d-1}q_{\perp}$ определяет лишь общий коэффициент, который мы по-прежнему будем обозначать λ :

$$\lambda = \frac{3}{2\pi v_F} \int \frac{d^{d-1}q_{\perp} \chi(q_{\perp}, 0) g^2(q_{\perp})}{(2\pi)^{d-1}} . \quad (1.24)$$

Единственное реальное различие с формулами, полученными во втором порядке теории возмущений, состоит в появлении перед аномальным членом множителя z :

$$\Sigma_{\text{an}}(k) = z \lambda v_F \Delta k . \quad (1.25)$$

Обратим внимание, что m^* в уравнении (1.15) не входит. Нормальный вклад в $\Sigma(k, \omega)$ может быть достаточно сложным, ибо в общем случае частотная зависимость присутствует как в $\chi(q, \omega)$, так и в вершинах $g(q, \Omega, \omega)$. Однако, и в общем случае

$$\Sigma_n(k, \omega) = z(i\omega - v_F^* \Delta k) I(0, 0) , \quad (1.26)$$

где $I(0,0)$ есть некоторое число. Подставляя полную собственную энергию в уравнение для функции Грина, получаем два выражения:

$$\frac{1}{z} = 1 + I(0,0) \cdot z , \quad (1.27)$$

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{m}(1 - z\lambda) . \quad (1.28)$$

Уравнение (1.27) определяет z , уравнение (1.28) определяет эффективную массу через z и эффективное взаимодействие между частицами на ферми-поверхности определенное формулой (1.24)

1в. Эквивалентность диаграммной техники и теории ферми-жидкости

Уравнение для эффективной массы эквивалентно выражению для перенормировки эффективной массы в терминах функционала Ландау. В этом можно убедиться различными способами. Самый прямой путь – вычислить аномальный вклад, не предполагая малости q [43]. Используя тот факт, что для аномального вклада вершины и спиновую восприимчивость можно заменить на их предельные значения на нулевой частоте, мы получаем:

$$\Sigma_{\text{ан}}(k, \omega) = -3g^2 z \int \frac{d\Omega d^d q}{(2\pi)^{d+1}} \frac{1}{i(\omega + \Omega) - \varepsilon_{k+q}} \chi(q) . \quad (1.29)$$

Интегрирование по частоте дает:

$$\Sigma_{\text{ан}}(k, \omega) = \Sigma_{\text{ан}}(k) = \frac{3}{2} g^2 z \int \frac{d^d q}{(2\pi)^d} \text{sgn}(\varepsilon_{k+q}) \chi(q) . \quad (1.30)$$

Вычитая из (1.30) $\Sigma_{\text{ан}}(k_F)$ и раскладывая по степеням $|\mathbf{k}| - k_F$, находим

$$\Sigma_{\text{ан}}(k) - \Sigma_{\text{ан}}(k_F) = z v_F \tilde{\lambda} \Delta k ,$$

где

$$\tilde{\lambda} = \frac{3g^2}{2v_F} \int \frac{d^d q}{(2\pi)^d} \frac{\partial [\text{sgn} \varepsilon_{k+q}]}{\partial \varepsilon_{k+q}} \frac{\partial \varepsilon_{k+q}}{\partial |\mathbf{k} + \mathbf{q}|} \mathbf{n}_k \mathbf{n}_{k+q} \chi(q) . \quad (1.31)$$

Поскольку $\frac{\partial [\text{sgn} \varepsilon_{k+q}]}{\partial \varepsilon_{k+q}} = +\delta(\varepsilon_{k+q})$, промежуточный фермион с моментом

$\mathbf{k} + \mathbf{q}$ расположен в точности на ферми-поверхности. Заменяя теперь $\mathbf{q}$ на $\mathbf{p} = \mathbf{k} + \mathbf{q}$ и интегрируя по $d^D p$, получаем в случае трех измерений:

$$\tilde{\lambda} = \frac{3g^2 p_F}{4\pi v_F} \int \frac{d\Omega}{4\pi} \cos \theta \chi(\theta) , \quad (1.32)$$

где $\chi(\theta) = \chi(|\mathbf{p} + \mathbf{k}|)$, причем $\mathbf{k}$ и $\mathbf{p}$, находятся на ферми-поверхности (θ - угол между $\mathbf{k}$ и $\mathbf{p}$).

Регулярный вклад в Σ по-прежнему имеет вид (1.26), так что уравнения (1.27) – (1.28) по-прежнему справедливы, правда, с заменой λ на $\tilde{\lambda}$. Подставляя (1.32) в (1.28), имеем

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{m} - \frac{p_F}{4\pi} \sum_{\beta} \int \frac{d\Omega}{4\pi} f_{\alpha\beta, \beta\alpha}(\theta) \cos \theta, \quad (1.33)$$

где

$$f_{\alpha\beta, \beta\alpha}(\theta) = z g^2 \chi(\theta) \sigma_{\alpha\beta} \sigma_{\beta\alpha}. \quad (1.34)$$

Уравнение (1.33) эквивалентно выражению для эффективной массы в теории Ландау, и $f(\theta)$ в этой теории есть функция взаимодействия Ландау. Для спин-спинового взаимодействия $f(\theta)$ связана с вершинной функцией Γ^ω соотношением

$$f_{\alpha\beta, \beta\alpha}(\theta) = z^2 \Gamma^\omega(\theta) \sigma_{\alpha\beta} \sigma_{\gamma\sigma}. \quad (1.35)$$

Напомним, что $\Gamma^\omega(\theta)$ есть вершинная функция

$$\lim_{q \rightarrow 0} \frac{\begin{array}{c} \xrightarrow{k, \omega} \\ \xleftarrow{k+q, \omega} \end{array} \quad \begin{array}{c} \text{штрихованная петля} \\ \xrightarrow{p, \omega'} \\ \xleftarrow{p+q, \omega'} \end{array}}{\quad}$$

без аномального вклада за счет частично-дырочной петли. Наша формула (1.34) почти совпадает с (1.35), отличаясь лишь одной степенью z . Это отличие легко объяснить, так как в рамках нашей модели диаграммный ряд для Γ^ω имеет вид:

$$\Gamma^\omega = \begin{array}{c} \xrightarrow{k} \quad \text{штрихованная петля} \quad \xrightarrow{p} \\ \xleftarrow{k} \quad \text{штрихованная петля} \quad \xleftarrow{p} \end{array} = \begin{array}{c} \text{штрихованная петля} \\ \text{штрихованная петля} \end{array} + \begin{array}{c} \text{штрихованная петля} \\ \text{штрихованная петля} \end{array} + \begin{array}{c} \text{штрихованная петля} \\ \text{штрихованная петля} \end{array} + \dots$$

Если бы χ не зависело от частоты, все диаграммы, начиная со 2-ой, обращались бы в ноль, ибо аномальный вклад от петли в Γ^ω отсутствует. Но в этом случае, как мы уже знаем, $z = 1$. Когда χ зависит от частоты, диаграммы с фермионными

Ферми-жидкость и сильные корреляции

петлями уже не обращаются в ноль за счет полюсов в восприимчивости. Схематически, диаграммный ряд для Γ^ω сводится к

$$\Gamma^\omega = g^2 \chi \left[1 + z^2 \int \chi G^2 + z^4 \left(\int \chi G^2 \right)^2 + \dots \right] = \frac{g^2 \chi}{1 - z^2 \int \chi G^2}, \quad (1.36)$$

но $\int \chi G^2$ не что иное, как $I(0,0)$. Используя теперь равенство (1.27), получаем:

$$1 - z = I(0,0)z^2 \equiv \int \chi G^2 z^2. \quad (1.37)$$

Подстановка (1.37) в (1.36) дает простое соотношение:

$$\Gamma^\omega = g^2 \frac{\chi}{z} \quad \text{или} \quad g^2 \chi = z \Gamma^\omega. \quad (1.38)$$

И, наконец, подставив (1.38) в (1.34), естественно воспроизведем (1.35) - результат теории ферми-жидкости Ландау.

2. Сильная связь

2а. Константа связи

Рассмотрим теперь уравнения (1.27)-(1.28) более детально. Начнем со второго порядка теории возмущений. В этом порядке $z = 1$, а

$$m^* = \frac{m}{1 - \lambda}. \quad (2.1)$$

Константа связи λ задана формулой (1.24). Используя формулу для восприимчивости (1.3') и интегрируя по $d^{D-1}q_\perp$ получаем:

$$\lambda_D \propto \frac{g^2 \chi_0}{v_F} \int \frac{dq q^{D-2}}{q^2 + \xi^{-2}}. \quad (2.2)$$

В пространстве размерности $D > 3$ интеграл по q сходится на нижнем пределе и определяется параметром обрезания $q_{\max} \sim 1/a$. Соответственно,

$$\lambda_{D>3} \propto \frac{g^2 \chi_0}{v_F a^{D-3}}. \quad (2.3)$$

Величина $\frac{g^2 \chi_0}{a^{D-2}}$ имеет размерность взаимодействия. Обозначим ее $\bar{g}$. Тогда

$$\lambda_{D>3} \propto \frac{\bar{g}}{E_F}. \quad (2.4)$$

В рамках RPA, стонеровское условие ферромагнетизма формулируется как обращение в ноль $1 - g\chi_0$ ($g = 0, \omega = 0$), где $\chi(q, \omega)$ – магнитная восприимчивость свободных фермионов. Если из этого условия выводить формулу для $\chi(q)$ вблизи перехода, используя равенство

$$\chi(q) = \frac{\chi_0}{1 - g\chi_0},$$

то (1.3') воспроизводится, если $\bar{g} = g$. В общем случае, такого условия нет, но по порядку вершины, $\bar{g} \sim g$. Тогда при $D > 3$,

$$\lambda_{D>3} \propto \frac{\bar{g}}{E_F} \propto \frac{g}{E_F}.$$

Как мы же говорили, отношение g к E_F должно быть мало для того, чтобы само понятие коллективных мод имело смысл. Соответственно, при $D > 3$, наше описание допускает только слабую связь.

Рассмотрим теперь $D \leq 3$. Начнем с $D = 3$. В трехмерном случае интеграл в (2.2) логарифмически зависит от нижнего предела. Собирая коэффициенты, получаем

$$\lambda_3 = \frac{3\bar{g}}{4\pi^2(v_F a)} \log \frac{\xi}{a} \propto \frac{\bar{g}}{E_F} \log \frac{\xi}{a}. \quad (2.5)$$

Видно, что несмотря на наличие общего малого множителя $\bar{g}/E_F$ константа связи λ_3 в действительности расходится в точке магнитного перехода. Очевидно тогда, что вблизи перехода приближение слабой связи неприменимо. Ситуация усугубляется в пространствах с $D < 3$. Вычисляя интеграл в (2.2), при размерности D получаем:

$$\lambda_{D<3} \propto \frac{\bar{g}}{E_F} \left(\frac{a}{\xi} \right)^{-3+D}. \quad (2.5a)$$

При $D = 2$

$$\lambda_{d=2} = \frac{3\bar{g}}{4\pi^2 v_F \xi^{\xi-1}}. \quad (2.6)$$

2б. Переход от $\Sigma(k)$ к $\Sigma(\omega)$

Вернемся теперь к формуле (2.1). Если увеличивать ξ при $D \leq 3$, то в конечном итоге λ станет больше 1. Согласно (2.1), при $\lambda = 1$ эффективная масса обращается в бесконечность, а при больших λ меняет знак, т.е. в системе возникает неустойчивость. Этот эффект был замечен в [44] и других работах тех

же авторов. Согласно их интерпретации, неустойчивость ферми-жидкости при $\lambda = 1$ означает возникновение в системе новой фазы, которую авторы [44] определили как фазу с "фермионным конденсатом". Вопрос, на который мы хотим ответить в настоящей статье, это применима ли формула (2.1) при $\lambda = 1$. Напомним, что этой формуле соответствует $\Sigma = \Sigma(k)$. Будет показано, что при $\lambda = 1$ пренебрегать перенормировкой z -фактора нельзя, а учет этой перенормировки сохраняет эффективную массу m^* конечной вплоть до точки магнитного перехода, где она действительно расходится.

Чтобы понять, что происходит, вернемся к уравнению для перенормировки z -фактора. Напомним, она возникает от частотных зависимостей взаимодействия и полных вершин. Можно показать, хотя проделывать это в явном виде мы не будем, что перенормировка вершин менее важна, чем частотная зависимость взаимодействия (т.е. магнитной восприимчивости). Соответственно, сосредоточимся на $\chi(q, \Omega)$. Как мы уже сказали, регулярной частотной зависимостью мы пренебрежем. $\chi(q, \Omega)$ происходит от высокоэнергетичных фермионов, и мы будем рассматривать только процессы, которые происходят при низких энергиях и поэтому вполне описываются нашим спин-фермионным гамильтонианом. В низшем порядке по взаимодействию спиновый поляризационный оператор (бозонная собственная энергия) дается диаграммой

Эта диаграмма также имеет нормальную и аномальную части. Частотная зависимость определяется аномальным (неаналитическим) вкладом в $\Pi(q, \Omega)$, который есть ни что иное, как затухание Ландау. В явном виде

$$\Pi(q, \Omega) \propto \left(\frac{|\Omega_m|}{v_F |q|} \right) \cdot \frac{g^2}{v_F a^{D-1}} + \Pi_{\text{рег}}. \quad (2.7)$$

Подставляя это выражение в формулу для полной спиновой восприимчивости, получаем:

$$\chi_{\text{полн}}^{-1}(q, \Omega) = \chi^{-1}(q, \Omega) + \Pi(q, \Omega) = \frac{\chi_0}{q^2 + \xi^{-2} + \frac{|\Omega|}{q} \gamma}, \quad (2.8)$$

где $\gamma \propto \frac{\bar{g}}{v_F a}$.

Теперь используем эту формулу, чтобы вычислить $I(0,0)$. Зная $I(0,0)$, вычислим множитель z . Согласно (1.11)

$$I(0,0) = -3g^2 \cdot \int \frac{d^D q d\Omega}{(2\pi)^{D+1}} \chi(q) \cdot \frac{1}{(\Omega + iv_F q_1)^2}.$$

Подставляя вместо $\chi(q)$ значение $\chi_{\text{полн}}(q, \Omega)$, имеем:

$$I(0,0) = -3g^2 \chi_0 \cdot \int \frac{d^D q d\Omega}{(2\pi)^{D+1}} \frac{1}{(\Omega + iv_F q_1)^2} \frac{1}{g^2 + \xi^{-2} + \frac{|\Omega| \gamma}{q}}. \quad (2.9)$$

Напомним, что $I(0,0) = 0$ при $\gamma = 0$, так как интеграл по частоте обращается в ноль. При конечных значениях γ неаналитическая частотная зависимость, связанная с затуханием Ландау, приводит к тому, что $I(0,0)$ становится конечным. Интегрируя по частоте, а затем по импульсу, и вводя переменную $\alpha = \frac{\xi^{-2}}{\gamma v_F}$, получаем из выражения (2.9)

$$I(0,0) = \lambda_D f(\alpha), \quad (2.10)$$

где $f(0) = 1$, а $f(\alpha \rightarrow 1)$ представляет собой убывающую функцию частоты. В

частности, при $D = 2$ $f(\alpha \rightarrow 1) \approx \frac{\log \alpha}{2\alpha}$, а при малых α , $f(\alpha) = 1 - 0.847\alpha^{1/2}$.

Теперь проанализируем полученный результат. То, что при $\alpha \rightarrow 1$ $I(0,0) \propto \frac{\ln \alpha}{\alpha}$ мало, не вызывает удивления, так как при $\alpha = \infty$ (т.е. при $\gamma = 0$) $I(0,0) = 0$. Гораздо более удивителен факт, что в обратном пределе $\alpha \rightarrow 1$ $I(0,0) = \lambda_D$, т.е. величина регулярного члена в фермионной собственной энергии оказывается того же порядка, что и сингулярный вклад. Более того, интеграл (2.9) в пределе малых α также оказывается "привязанным" к ферми-поверхности, что видно непосредственно из ответа: поскольку $\lambda_D < 3$ расходится при $\xi = \infty$, то величина интеграла для $I(0,0)$ в основном зависит от малых q и Ω . Более того, подставляя (2.10) с $f(\alpha) = 1$ в полное уравнение для $\Sigma(k, \omega) = \Sigma_n(k, \omega) + \Sigma_{\text{ан}}(k, \omega)$ (см.(1.22) и (1.22')), получаем:

$$\Sigma(k, \omega) = (i\omega - v_F \Delta k) \lambda_D + v_F \Delta k \lambda_D \equiv i\omega \lambda_D. \quad (2.11)$$

Видно, что ситуация изменилась полностью: раньше (при $\alpha \rightarrow 1$) $\Sigma = \Sigma(k)$, теперь (при $\alpha \rightarrow 1$) $\Sigma = \Sigma(\omega)$. При таком $\Sigma(\omega)$ определять поправку к фермионной массе от перенормировки z -фактора, естественно нельзя.

Естественный вопрос, на который мы теперь должны ответить: где (то есть при каком λ) происходит переход (кроссовер) от одного режима к другому. Напомним, что все вышеприведенные рассуждения основаны на втором порядке теории возмущений, который, естественно, применим только при малых λ . Простые оценки показывают, что кроссовер происходит при $\alpha=0(1)$, то есть при $\gamma v_F \propto \xi^{-2}$. Ранее мы оценили $\gamma \propto \frac{\bar{g}}{v_F^2 a}$. Таким образом

$$\alpha^{-1} = \frac{\gamma v_F}{\xi^{-2}} \propto \frac{\bar{g}}{v_F / a} \left(\frac{\xi}{a} \right)^2 \propto \lambda_D \left(\frac{\xi}{a} \right)^{-1+D}. \quad (2.12)$$

Соответственно, переход от $\Sigma(k)$ к $\Sigma(\omega)$ происходит при

$$\lambda_D \propto \left(\frac{a}{\xi} \right)^{D-1} \propto 1. \quad (2.13)$$

Это – один из наиболее важных результатов статьи. Видно, что смена поведения системы происходит уже при малых значениях константы связи λ_D , когда второй порядок теории возмущений еще применим. В частности, это означает, что формула (2.1) для эффективной массы применима только при $\lambda_D \propto 1$, и ее нельзя экстраполировать к $\lambda_D \geq 1$.

На первый взгляд, тот факт, что Σ_n и Σ_{an} сравнимы между собой, означает, что идея о разделении вкладов в собственную энергию на нормальный и аномальный уже не верна. В действительности, однако, это не так. Оказывается, при $\alpha \propto 1$ снова можно разделить вклады в собственную энергию на нормальный и аномальный, только расчет аномального члена должен происходить иначе. Обратимся снова к формуле (1.11), заменив в ней $\chi(q)$ на $\chi_{\text{полн}}(q, \Omega)$. Аномальный вклад в собственную энергию связан с раздвижкой полюсов в функциях Грина и определяется интегралом

$$I = \frac{1}{2\pi} \int \frac{dq_1 d\Omega}{[\omega + \Omega + i v_F (\Delta k + q_1)][\Omega + i q_1 v_F]}. \quad (2.14)$$

В предыдущих вычислениях сначала интегрировали по частоте. После этого интеграл по q_1 ограничивался областью $-\Delta k < q_1 < 0$. Производя интегрирование по импульсу, имели:

$$I = I_k = -\frac{i \Delta k}{\omega + i v_F \Delta k} = +\frac{\Delta k}{i \omega - v_F \Delta k}. \quad (2.15)$$

Однако, как легко видеть из (2.14), двумерный интеграл по q_1, Ω расходится логарифмически на верхнем пределе, так что результат интегрирования может

зависеть от того, в какой последовательности производится интегрирование. Проверим это. Проинтегрируем сначала по dq_1 , а потом по $d\Omega$. Интегрирование производится так же как раньше. Однако теперь имеем ($v_F q_1 = x$):

$$I = -\frac{1}{2\pi v_F} \int d\Omega \int dx \frac{1}{(x - i\Omega)(x + v_F \Delta k - i(\omega + \Omega))}. \quad (2.16)$$

Интеграл по dx конечен, когда полюса расположены в разных полуплоскостях, т.е. когда $-\omega < \Omega < 0$ (для определенности мы положим $\omega > 0$). Производя интегрирование, получаем

$$I = I_\omega = -\frac{1}{2\pi v_F} \frac{2\pi i \omega}{v_F \Delta k - i\omega} = \frac{1}{v_F} \frac{i\omega}{i\omega - v_F \Delta k}. \quad (2.17)$$

Сравнивая выражения (2.15) и (2.17) видим, что два ответа для I отличаются на константу.

Какой из этих двух результатов правильный?

Для ответа на этот вопрос заметим, что различия между I_k и I_ω связано с формальной расходимостью двумерного интеграла в (2.14) на верхнем пределе. В действительности, расходимость фиктивна, ибо спиновая восприимчивость, которую мы не включили в (2.14), обращается в ноль при $q_1, \Omega \rightarrow \infty$. На математическом языке это означает, что восприимчивость $\chi(q, \Omega)$ регуляризует интеграл (2.14). Когда мы пренебрегаем частотной зависимостью в $\chi(q, \Omega)$ [что соответствует $\alpha \ll 1$], интеграл по $d\Omega$ был ничем не ограничен, а интеграл по dq_1 , сходился за счет $\chi(q)$. В этой ситуации естественно интегрировать сначала по частоте, а потом по импульсу. Результат и есть I_k . Однако, при $\alpha \ll 1$, ситуация оказывается обратной – регуляризация интеграла (2.14) обеспечивается частотным членом, т.к. для характерных $v_F q \sim \Omega$, динамический член в $\chi^1(q, \Omega)$ вида $\gamma |\Omega|/q \ll \gamma v_F$ превосходит статическую часть, которая порядка ξ^{-2} . В этой ситуации, естественно, первым должно производиться интегрирование по импульсу, а потом по частоте. Результат такого интегрирования есть I_ω . Заметим также, что разница между I_ω и I_k в точности соответствует "регулярному" вкладу при $\alpha \ll 1$.

Вывод из приведенного выше рассмотрения таков: и при $\alpha \ll 1$ собственная энергия $\Sigma(k, \omega)$ может быть разделена на регулярную и аномальную части, но теперь

$$\Sigma_a(k, \omega) = \Sigma(\omega) = i\lambda\omega,$$

а

$$\Sigma_n(k, \omega) = (i\omega - v_F \Delta k) \tilde{I}(0, 0),$$

где

$$\tilde{I}(0,0) = I(0,0) - I(0,0)|_{\alpha=0}.$$

Напомним, что $\tilde{I}(0,0)$ мало при $\alpha \ll 1$. В частности, при $D=2$, $\tilde{I}(0,0) \propto \lambda_D \alpha^{1/2}$.

2в. Случай $\lambda \geq 1$

После того, как было установлено, что при $\lambda \leq 1$ собственная энергия зависит в основном от частоты, можно попытаться описать поведение системы при $\lambda \geq 1$, т.е. при наличии сильной связи. Для определенности будем рассматривать случай $D=2$. Поведение системы при других D из интервала $1 < D \leq 3$ качественно не отличается от поведения при $D=2$.

В общем случае рассмотрение поведения системы при $\lambda_{D=2} = \lambda \geq 1$ требует учета бесконечно большого числа диаграмм. Однако, при $\Sigma = \Sigma(\omega)$ ситуация существенно упрощается по трем причинам [37,45]:

- 1) вершинные поправки малы по параметру $(\bar{g}/E_F)^{1/2}$;
- 2) бозонная собственная энергия (частично-дырочный поляризационный оператор) такая же, как для свободных фермионов, то есть по-прежнему определяется формулой (2.7); поправки к этой формуле малы по тому же параметру $(\bar{g}/E_F)^{1/2}$;
- 3) регулярная часть собственной энергии $\Sigma_n(k,\omega)$ так же мала в меру малости $(\bar{g}/E_F)^{1/2}$.

В последнем легко убедиться непосредственным вычислением. Как известно $\tilde{I}(0,0) \propto \lambda \alpha^{1/2}$. Подставляя $\lambda \propto \frac{\bar{g}}{E_F} \left(\frac{\xi}{a}\right)$ и $\alpha \propto \left(\frac{\bar{g}}{E_F}\right)^{-1} \left(\frac{\xi}{a}\right)^{-2}$, находим

$$\tilde{I}(0,0) \propto \left(\frac{\bar{g}}{E_F}\right)^{1/2} \propto 1. \text{ Мы не будем приводить в явном виде вычислений}$$

вершинных поправок и поправок к поляризационному оператору. Отметим только, что они происходят от регулярной части фермионной собственной энергии (аномальная часть вклада не вносит), и потому малы в меру того же параметра $(\bar{g}/E_F)^{1/2}$. Заметим, что при произвольной размерности D , величина $(\bar{g}/E_F)^{1/2}$ заменяется на $(\bar{g}/E_F)^{(D-1)/2}$. Это, в частности, показывает, что в одномерном случае $D=1$ наша теория несправедлива.

Без вершинных поправок полная собственная энергия по-прежнему определяется формулой (1.10) только с общим множителем z , v_k^* вместо v_k и

$\chi_{\text{полн}}(q, \Omega)$ вместо $\chi(q)$; при этом $\chi_{\text{полн}}(q, \Omega)$ задается выражением (2.8). Ограничиваясь в интеграле для $\Sigma(k, \omega)$ только аномальным вкладом, получаем

$$\Sigma(k, \omega) = i\omega\lambda \left(z \frac{m}{m^*} \right). \quad (2.18)$$

Подставляя этот результат в $G(k, \omega)$, получаем систему двух связанных уравнений для m/m^* и z :

$$\begin{aligned} \frac{1}{z} - \frac{m}{m^*} \lambda z &= 1, \\ \frac{1}{m^*} &= \frac{1}{m} (1 - \lambda z), \end{aligned} \quad (2.19)$$

решениями которых являются

$$m^* = m(1 + \lambda); \quad z = \frac{1}{1 + \lambda}. \quad (2.20)$$

Формулы (2.20) – основной результат ферми–жидкостного рассмотрения при $\lambda \geq 1$. Видно, что эффективная масса возрастает при приближении к точке ферромагнитного перехода (где $\lambda = \infty$), а z -фактор фермионов уменьшается в меру того же параметра $(1 + \lambda)$, который задает увеличение массы. Видно также, что эффективная масса m^* не обращается в бесконечность до точки перехода. Более того, сравнивая формулу (2.1) с точным уравнением (2.20), видим, что (2.1) можно рассматривать как первый член разложения (2.20) по степеням λ .

Увеличение эффективной массы при возрастании λ означает, что теплоемкость системы возрастает при приближении к точке перехода, а при $\lambda = \infty$ (то есть $\xi^{-1} = 0$), теория ферми-жидкости перестает работать. Спрашивается, что ее заменяет? Теперь мы готовы ответить на этот вопрос.

2г. Неферми-жидкостное поведение в критической точке ферромагнитной неустойчивости

В предыдущих параграфах мы отвечали на вопрос о поведении фермионной системы на самых малых частотах вблизи ферромагнитного перехода. Ответ, который мы получили – система ведет себя как ферми-жидкость вплоть до точки перехода, но за счет аномального члена в собственной энергии эффективная масса расходится в точке перехода. Теперь надо ответить на другой вопрос. До каких энергий (частот) система сохраняет ферми-жидкостное поведение при $\lambda > 1$? Покажем, что верхняя граница справедливости теории ферми-жидкости уменьшается по мере увеличения λ , от E_F до $E_F \lambda^{-2}$, так что при

$\lambda \ll 1$ ферми-жидкость (с $G = \frac{z}{i\omega - v_F^* \Delta k}$) существует только вплоть до $E_F \lambda^2$, а

между $E_F \lambda^2$ и E_F в системе возникает новое универсальное низкоэнергетическое поведение, отличное от ферми-жидкостного. Когда $\lambda = \infty$, верхняя граница ферми-жидкости обращается в 0, а неферми-жидкостное поведение распространяется до самых малых энергий.

В данном случае важно то обстоятельство, что малость вершинных поправок и $\Sigma(k)$ никак не связана с близостью к переходу. Действительно, $(\bar{g}/E_F)^{1/2}$ остается малым параметром даже когда $\lambda \rightarrow \infty$. Соответственно в обоих фазах, и в ферми-жидкостной, и в новой фазе между верхней границей ферми-жидкости и E_F , фермионная собственная энергия с точностью до членов порядка $(\bar{g}/E_F)^{1/2}$ определяется исключительно аномальным вкладом и зависит только от частоты. С этой же точностью в обоих фазах можно использовать выражение (2.8) для восприимчивости $\chi_{\text{полн}}(q, \Omega)$. Используя эти обстоятельства и подставляя полную функцию Грина

$$G^{-1}(k, \omega) = i\omega - v_F \Delta k + \Sigma(\omega) \quad (2.21)$$

в выражение для собственной энергии, получаем:

$$\begin{aligned} \Sigma(k, \omega) &\approx \Sigma(k_F, \omega) = \\ &= -3\bar{g} \int \frac{d\Omega dq_1 dq_2}{(2\pi)^3} \frac{1}{q_2^2 + q_1^2 + \xi^{-2} + \frac{|\omega|d}{\sqrt{q_2^2 + q_1^2}}} \frac{1}{i(\omega + \Omega) + \Sigma(\omega + \Omega) - v_F q_1}. \end{aligned} \quad (2.22)$$

Поскольку нас интересует только аномальный вклад, можно сначала проинтегрировать по q_1 , положив $q_1 = 0$ в выражении для восприимчивости. Интегрирование по dq_1 приводит к следующему результату:

$$\begin{aligned} \int dq_1 \frac{1}{i(\omega + \Omega) + \Sigma(\omega + \Omega) - v_F q_1} &= -\frac{1}{v_F} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx}{x - [i(\omega + \Omega) + \Sigma(\omega + \Omega)]} = \\ &= -\frac{\pi}{v_F} \text{sgn}(\omega + \Omega) \end{aligned} \quad (2.23)$$

Было использовано то обстоятельство, что $\text{sgn } \Sigma(\omega + \Omega) \equiv \text{sgn } (\omega + \Omega)$. Видно, что результат интегрирования по q_1 не зависит от величины $\Sigma(\omega + \Omega)$, т.е. уравнение (2.22) в действительности не является интегральным уравнением. Это прямое следствие факторизации интеграла по импульсу. Поправки за счет зависимости от q_1 в $\chi(q, \omega)$ конечно же приводят к членам в правой части (2.22), которые зависят от $\Sigma(k)$, но, как мы уже сказали, эти члены

малы по параметру $(\bar{g}/E_F)^{1/2}$. Заметим, что наш подход не эквивалентен часто используемой вычислительной процедуре, называемой FLEX (fluctuation exchange approximation [46]). В такой процедуре члены, происходящие от не-факторизации интеграла по импульсу учитываются, а вершинными поправками по-прежнему пренебрегают. Поскольку оба типа членов малы по одному и тому же параметру, учет одних поправок и не учет других едва ли может быть оправдан.

Вернемся к интегралу для собственной энергии. Подставляя (2.23) в (2.22) и интегрируя по dq_2 , получаем

$$\Sigma = i\lambda \int_0^{\omega_m} d\Omega \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{xdx}{x^3 + x + \left(\frac{|\Omega|\gamma}{\xi^{-3}} \right)}. \quad (2.24)$$

При конечной корреляционной длине, на самых малых частотах, членом $|\Omega|\gamma\xi^2$ можно пренебречь и тогда получаем $\Sigma = i\lambda\omega_m$, то есть формулу теории ферми-жидкости. В обратном предельном случае $\xi = \infty$, мы имеем

$$\Sigma = \frac{3\bar{g}}{4\pi^2 v_F} i \int_0^{\omega_m} d\Omega \int \frac{dq_1 \cdot q_1}{q_1^3 + |\Omega|\gamma} = \frac{9\bar{g}}{8\pi^2 v_F} \frac{\omega_m^{2/3}}{\gamma^{1/3}} i. \quad (2.25)$$

Собственная энергия на мацубаровской оси ведет себя как $\Sigma \propto i\omega_m^{2/3}$. При реальных частотах $\text{Re}\Sigma(\omega) \propto I_m\Sigma(\omega) \propto \omega^{2/3}$. Следовательно, вплоть до самых малых частот мнимой частью собственной энергии пренебречь нельзя по сравнению с действительной частью $\Sigma(\omega)$. Такое поведение очевидно противоречит основному постулату теории ферми-жидкости. Существенно также, что на низких частотах $g^{-1/3}\omega^{2/3} \propto \omega$, так что $\Sigma(\omega) \propto \omega$.

Для количественного анализа приведем точный результат для γ при $D = 2$: $\gamma = \frac{\bar{g}}{\pi v_F^2 a}$. Подставляя это значение в формулу (2.25), при $\xi = \infty$ получаем:

$$\Sigma = i\omega^{2/3}\omega_0^{1/3}, \quad (2.26)$$

где

$$\omega_0 = \left(\frac{9}{8}\right)^3 \frac{1}{\pi^5} E_F \cdot \left(\frac{\bar{g}}{E_F}\right)^2 \propto E_F. \quad (2.27)$$

Неравенство $\omega_0 \propto E_F$ полностью согласуется с идеей о том, что сильные корреляции вблизи перехода в ферромагнитное состояние затрагивают только низкоэнергетическое поведение системы. Действительно, при $\omega > \omega_0$ $\Sigma(\omega) < \omega$, то есть система ведет себя как слабо взаимодействующий газ квазичастиц.

Ферми-жидкость и сильные корреляции

При конечных значениях ξ собственная энергия $\Sigma(\omega)$ испытывает кроссовер от ферми-жидкостного к неферми-жидкостному поведению. Это происходит при $\frac{\omega\gamma}{\xi^{-3}} \ll 1$, то есть, когда

$$\omega \ll \omega_{sf} = \frac{\xi^{-3}}{\gamma} \equiv \frac{\pi E_F^2}{\bar{g}} \left(\frac{a}{\xi} \right)^3 \ll \frac{\omega_0}{\lambda^3} \ll \omega_0. \quad (2.28)$$

При произвольных ω , выражение для $\Sigma(\omega)$ можно записать в виде

$$\Sigma = i\lambda\omega f\left(\frac{\omega}{\omega_{sf}}\right), \quad (2.29)$$

где

$$f(x) = \int_0^1 dy \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{z dz}{z(z^2 + 1) + xy}. \quad (2.30)$$

В пределах малых и больших x , $f(0) = 1$, $f(x \gg 1) \approx \frac{3}{2\pi(x^{1/3})}$.

График функции $f(x)$ приведен на рис.1а. На рис.1б приведена зависимость мнимой части собственной энергии как функции частоты. При малых частотах $\Sigma'' \propto \omega^2$, но при $\omega > \omega_{sf}$ мнимая часть собственной энергии Σ'' отклоняется от квадратичной зависимости и плавно переходит на зависимость $\omega^{2/3}$.

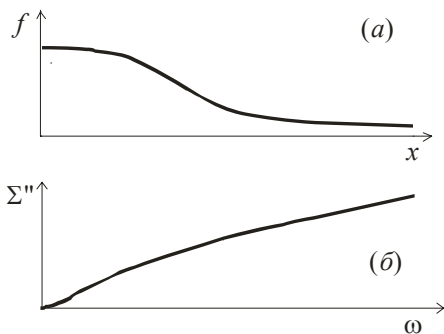


Рис. 1 (а) – поведение функции $f(x)$ (см. уравнение (2.29)); (б) – собственная энергия как функция частоты. На малых частотах – $\Sigma(\omega) \propto \omega^2$, на больших частотах – $\Sigma(\omega) \propto \omega^{2/3}$

Схематически поведение системы при $\lambda \ll 1$ на разных частотах представлено на рис. 2.

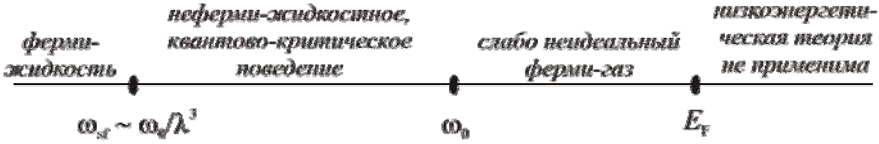


Рис.2 Схематическое поведение системы на разных частотах

Поведение системы между ω_{sf} и ω_0 не зависит от длины корреляции ξ , т.е. такое же, как если бы система была в критической точке где, $\xi = \infty$, а $\omega_{sf} = 0$. По этой причине неферми-жидкостное поведение называют также квантово-критическим.

Разумеется, неферми-жидкостная форма собственной энергии $\Sigma(\omega)$ приводит к неферми-жидкостному поведению термодинамических характеристик системы. В частности, теплоемкость $C(T)$ ведет себя так

$$C(T) \propto T^{2/3}. \quad (2.31)$$

При произвольной размерности ($1 < D < 3$) квантово-критическое поведение характеризуется следующей зависимостью собственной энергии от частоты:

$$\Sigma(\omega) \propto \omega^{D/3}. \quad (2.32)$$

В трехмерном случае ($D = 3$) поведение оказывается почти таким же, как и поведение ферми-жидкости, но отличается наличием логарифмической зависимости:

$$\Sigma(\omega_m)|_{D=3} \propto \omega_m \log \omega_m. \quad (2.33)$$

Хотя отличие от ферми-жидкости $\Sigma(\omega_m) \propto \omega_m$ кажется минимальным, для реальных частот λ формула (2.33) принимает вид

$$\Sigma'(\omega) \propto \omega \log \omega, \quad \Sigma''(\omega) \propto \omega. \quad (2.34)$$

Функциональная зависимость $\Sigma'(\omega)$ довольно существенно отличается от ферми-жидкостной $\Sigma''(\omega) \propto \omega^2$. Тем не менее, тот факт, что согласно (2.34) на низших частотах $\Sigma'(\omega) \propto \Sigma''(\omega)$ означает, что теория ферми-жидкости в этом случае "почти что" справедлива, хотя, например, теплоемкость $C(T) \propto T \log T$ логарифмически отличается от обычного ферми-жидкостного поведения. По этой причине систему, поведение которой определяется формулами (2.33)–(2.34), называют маргинальной ферми-жидкостью [47].

Заключение

Как нам представляется, проведенное рассмотрение позволяет понять причины, заставляющие описывать некоторые ферми-системы, выходя за пределы

стандартной теории ферми-жидкости. Надо иметь в виду, что все рассмотрение носит принципиальный характер. При переходе к исследованию свойств конкретных металлов или других объектов необходима конкретизация энергетического спектра исследуемой системы. Наиболее бросающееся в глаза отличие между абстрактным металлом со сферической поверхностью Ферми и конкретным металлом связано с тем, что в теории ферми-жидкости (и особенно в формулировке границ ее применимости) важную роль играют импульсы, близкие к диаметру ферми-сферы. У многосвязных поверхностей Ферми, а также у поверхностей Ферми с перемычками, диаметры могут существенно отличаться от $2p_F = 2\hbar(3\pi^2n)^{1/3}$, где n – плотность электронов проводимости.

Нам приятно, что эта статья публикуется в сборнике в честь Б.И. Кочелаева. Это – свидетельство интереса наших друзей – казанских физиков-теоретиков и, прежде всего, Бориса Ивановича к современным проблемам электронной теории нормальных металлов.

Литература

1. Л.Д. Ландау, ЖЭТФ, **35**, 97, 1958.
2. А.А. Абрикосов, Л.П. Горьков, И.Е. Дзялошинский "Методы квантовой теории поля в статистической физике" М.: Наука, 1961.
3. Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский "Статистическая физика" ч.2, М.: Наука, 1978.
4. Н. Ашкрофт, Н. Мермин "Физика твердого тела" Мир, Москва, 1979.
5. И. Лифшиц, М. Азбель, М. Каганов "Электронная теория металлов" М.: Наука, 1971.
6. М. Каганов, А. Мебиус, ЖЭТФ, **86**, 691, 1984.
7. М. Каганов, Т. Лисовская. ЖЭТФ, **80**, 2445, 1981.
8. Этот вопрос подробно обсуждался в книге A.L. Fetter, D.L. Waleska "Quantum Theory of Many-Particle Systems (Mc Graw – Hill, New York, 1971).
9. W. Kohn, J.M. Luttinger, Phys.Rev.Lett., **15**, 524, 1965.
10. D. Fay, A. Layzer, Phys.Rev.Lett., **20**, 187, 1968;
М.А. Беганов, А.В. Чубуков, М.Ю. Коган, Int. J.Mod.Phys. B, **6**, 2471, 1992 (см. также ссылки в данной статье).
11. A.V. Chubukov, D.L. Maslov, Phys.Rev. B, **68**, 155113, 2003.
12. Г.М. Элиашберг. Sov.Phys.JETP, **16**, 780, 1963.
13. W.K. Abel *et al*, Phys.Rev., **147**, 110, 1966.
14. P.W. Anderson. Physics, **2**, 1, 1965.
15. S. Doniach and S. Engelsberg, Phys.Rev.Lett., **17**, 750, 1966.
16. W.F. Brinkman, S. Engelsberg.
17. D.J. Amit, J.W. Kane, H. Wagner, Phys.Rev., **175**, 313, 1968.
18. G.M. Carneiro, C.J. Pethick, Phys.Rev. B, **16**, 1933, 1977.

19. D.S. Hirashima, H. Takahashi, J.Phys.Soc.Japan, **67**, 3816, 1998.
20. J.W. Serene, D.W. Hess, Phys.Rev. B, **44**, 3391, 1991.
21. D. Coffey, K.S. Bedell, Phys.Rev.Lett., **71**, 1043, 1993.
22. A.V. Chubukov, D.L. Maslov, cond-mat/0304381.
23. D. Belitz, T.R. Kirkpatrick, T. Vojta, Phys.Rev. B, **55**, 9452, 1997.
24. М.А. Баранов, М.Ю. Каран, М.С. Маренко. Письма в ЖЭТФ, **58**, 734, 1993.
25. G.Y. Chitov, A.J. Millis, Phys.Rev.Lett., **86**, 5337, 2001.
26. B.N. Narozhny, G. Zala, I.L. Aleiner, Phys.Rev. B, **65**, 180202, 2002. S.Das Sarma, V. Galitskii, Y. Zhang, cond-mat/0303363.
27. D.L. Maslov *et al*, to appear.
28. S. Sachdev "Quantum phase transitions" Cambridge University Press, 1999.
29. T. Senthil *et al*, cond-mat/0312617.
30. A. Schroder *et al*, Nature, **407**, 351, 2000.
31. P. Gegenwart *et al*, Phys.Rev.Lett., **89**, 056402, 2002;
O. Trovarelli *et al*, Phys.Rev.Lett., **85**, 626, 2000.
32. A. Sidorov *et al*, Phys.Rev.Lett., **89**, 157004, 2002.
33. M. Grosche *et al*, J.Phys.Cond.Mat. **12**, 533, 2000.
34. N.D. Mathur *et al*, Nature, **394**, 39, 1998.
35. J.S. Kim *et al*, Solid State Comm., **114**, 413, 2000.
36. P. Coleman in "Lectures on the Physics of Highly Correlated Electron Systems, VI, "ed. By F. Manchini", AIP, New York, p.79, 2002.
37. B. Altshuler, L. Ioffe, A.J. Millis, Phys.Rev. B, **52**, 5563, 1995;
A. Chubukov, A. Finkelstein, R. Haslinger, D.Morr, Phys.Rev.Lett., **90**, 077002, 2003.
M.Dzero, L.P. Gorkov, cond-mat/0310124.
38. R.Roussev, A.J. Millis, Phys. Rev. B, **63**, 140504, 2001;
Z. Wang, W. Mao, K. Bedell, Phys.Rev.Lett., **87**, 257001, 2001.
39. Г.М. Элиашберг, Sov.Phys.JETP, **11**, 696, 1960.
40. А.Б. Мигдал, Sov.Phys.JETP, **7**, 996, 1958.
41. A. Abanov, A. Chubukov, J. Schmalian, Adv. in Physics, **52**, 119, 2003.
42. S.B. Treiman, R. Jackw, D. Gross, Lectures on Current Algebra and its applications, Princeton University Press, 1972.
43. В.М. Яковенко, В.А. Ходель, JETP Lett., **78**, 398, 2003.
44. В.А. Ходель, В.Р. Шагинян, М.В. Зверев, Письма в ЖЭТФ, **65**, 242, 1997.
45. A.V. Chubukov, C. Pepin, J. Rech, Phys.Rev.Lett., to appear , 2004.
46. См. к примеру D. Manske, I. Eremin, K.N. Bennemann, cond-mat/0210299.
47. C.Varma *et al*, Phys.Rev.Lett., **63**, 1996, 1989.

FERMI LIQUID AND STRONG CORRELATIONS

М.И. Казанов¹, А.В. Чубуков²

¹ 7 Agassis ave., Belmont, MA 02478, USA

² University of Wisconsin, Madison, WI 53706, USA

We present the analysis of the behavior of interacting fermions near the Stoner instability in a Fermi liquid. We show that the Landau damping of the spin susceptibility is a relevant perturbation near the quantum critical point, and it gives rise to the effective locality of the problem – fermionic self-energy near the transition strongly depends on frequency, but weakly depends on momentum. We discuss how Fermi liquid behavior gradually disappears near the transition in $D \leq 3$, and present the results for the fermionic self-energy at the critical point.

ISOTROPIC PHASE OF NEMATICS IN POROUS MEDIA

B.M. Khasanov

Kazan State University, Kazan 420008, Russia

We study the effect of random porous matrices on the isotropic- nematic phase transition. Sufficiently close to the cleaning temperature, both random field and thermal fluctuations are important as disordering agents. A novel random field fixed point of renormalization group equation was found that controls the transition from isotropic to the replica symmetric phase. Explicit evaluation of the exponents in $d = 6 - \varepsilon$ dimensions yields to a dimensional reduction and three-exponent scaling.

Liquid crystalline ordering in a confined geometry has been the subject of considerable investigation during the past decade. The study of liquid crystals constrained to a random network of porous silica aerogel has been an area of current interest due to their importance in technological applications and from a fundamental point of view. Such liquid crystal porous matrix systems emerge in many natural and technological processes, giving rise to scientific activity. One of the fundamental questions is the effect of finite size and quenched disorder on the phase transitions. Liquid crystals exhibit a variety of experimentally accessible phase transitions involving orientational and translational ordering. Most of the studies are focused on the nematic-isotropic or nematic-smectic phase transitions. For example, the first has been investigated using various experimental techniques [1]. The main results could be summarized as follows: (a) the bulk isotropic-nematic (I-N) phase transition temperature is shifted down and the character of the transition changes; (b) even for above the bulk I-N phase transition temperature, there exists a weak residual nematic ordering; and (c) Monte Carlo simulations show that in some cases the nematic order is replaced by a quasi-long-range nematic phase.

Theoretical modeling of such phenomena is difficult. The porous matrix not only geometrically confines the liquid crystal, but also induces a random orienting field that fixes the direction of the order parameter near the surface of the matrix. Some experiments with liquid crystals in random porous media [2] showed that the random preferential orientation of the liquid crystal along the pore surface (whose normal changes direction randomly) profoundly influences the dynamics of an I-N phase transition in such a system, and fluctuations of the orientation order parameter relax at a much slower rate than in bulk liquid crystals. These experiments have stimulated theoretical work [3], and a random-field (RF) model for nematic liquid crystal has been proposed that qualitatively explains the glasslike behavior seen in experiments for liquid crystal-aerogel systems [2,4,5,6].

The nematic phase within the pores could be modeled as an Ising-like system with an imposed random field coupled directly to the orientational order parameter to account for the random confinement. Such a model uses a random uniaxial anisotropy on a spin system [3,7], including a symmetric coupling between the anisotropy vector and order parameter in order to account for the “up-down” nematic symmetry. This RF term in the Hamiltonian of the nematic liquid crystal is linear coupled to the order parameter. The strength of the random field in this model should directly depend on the anchoring strength of the molecules to the surface of the gel and indirectly on the porosity. This model may be described as an RF Ising model.

However, the experimentally obtained functional form for the scaled autocorrelation function is quite different from that obtained in a simulation of the RF Ising model. Really, the liquid crystal is a system with many degrees of freedom (the order parameter tensor has five independent components) and has a different symmetry from the Ising model.

The basic point in discussing the effect of RF on ordered nematic phases follows from the Imry-Ma argument [8,9], which suggests that this continuous symmetry system does not have nematic long-range order for dimensions less than four ($d < 4$). The possibility for the nematic phase to be replaced by a glassy state characterized by quasi-long-range order was discussed by Radzihovsky and Toner [10], and also predicted by numerical simulations [11], and by Feldman [12] using a renormalization group (RG) approach.

The theory [12] is the first one that extends beyond the mean field approximation for the low-temperature phase of disordered nematics. In this low-temperature phase, uniaxial nematics in random porous media can be mapped onto the RF $O(N)$ model. However, mapping becomes invalid near the phase transition to the isotropic phase. In this paper, we focus on the effects of quenched disorder that are introduced by the host silica aerogel at the high-temperature phase, i.e., above the I-N phase transition temperature. An appropriate model would require a full Landau-de Gennes type Hamiltonian incorporating a random orienting field. We carry out the mean field analysis and RG treatment as well.

The order parameter for a nematic liquid crystal is a three-dimensional symmetric traceless second rank tensor $Q_{\alpha\beta}$. The effective Landau-de Gennes free-energy functional appropriate to the RF nematic model near the I-N phase transition can be written as

$$F = \int d^d x \left\{ \frac{1}{2} r_0 \text{Tr}(Q^2) + \frac{1}{2} (\nabla Q)^2 - \frac{1}{3} b \text{Tr}(Q^3) + \right. \\ \left. + \frac{1}{4} c \left[\text{Tr}(Q^2) \right]^2 - \text{Tr}(h(x)Q(x)) \right\} \quad (1)$$

where $r_0 = T - T_0$, T_0 is the second order transition temperature if $b = 0$ (bulk supercooled temperature limit), and b, c are temperature independent constants. The quenched RF $h_{\alpha\beta}(x)$ is a symmetric, traceless, Gaussian random tensor with vanishing quenched average $[h_{\alpha\beta}(x)]_{av} = 0$ and with variance [13]

$$[h_{\alpha\beta}(q)h_{\gamma\delta}(-q)]_{av} = h_0^2 \left(\frac{1}{2} (\delta_{\alpha\gamma}\delta_{\beta\delta} + \delta_{\alpha\delta}\delta_{\beta\gamma}) - \frac{1}{n} \delta_{\alpha\beta}\delta_{\gamma\delta} \right), \quad (2)$$

n is the dimensionality of the tensor $h_{\alpha\beta}$.

Ground state configurations of the longitudinal component of the field $Q(x)$ (we consider here only the uniaxial nematic) are defined by the saddle-point equation

$$-\Delta Q + r_0 Q - bQ^2 + cQ^3 = h(x). \quad (3)$$

It will be useful to recall first what behavior is expected for a nematic placed in a non-random field, i.e., a homogeneous field in a uniform direction. The isotropic phase acquires some order and is transformed into a paranematic phase. The paranematic-nematic phase transition occurs at $r_{0c} = (2b^2/9c)(1 + h/2h_c)$. Here $h_c = (b^3/27c^2)$ is a uniform critical field that determines the nematic-paranematic critical point, $r_0^+(h_c) = b^2/3c$. For $h < h_c$ the paranematic supercooling temperature T_0 and the nematic overheating temperature T^* both have field dependence

$$\frac{h}{h_c} = 1 - 3 \frac{T^+ - T}{T^+ - T_0} \pm 2 \left(\frac{T^+ - T}{T^+ - T_0} \right)^{3/2}, \quad (4)$$

where $(\pm)$ correspond to T_0 and T^* , respectively. All three temperatures T_0 , T_c , and T^* merge at the nematic-paranematic critical point r_0^+ . For $h > h_c$, the order parameter Q will increase smoothly as temperature is decreased.

Apparently, the solutions of Eq. (3) with non-homogeneous $h(x)$ may essentially depend on a particular configuration of the quenched fields. The effect of RF is averaged over a length scale L , over which the orientation is correlated. The mean magnitude of the sum of the random fields is given by the sum of the squares of the random fields. Using the central limit theorem, the effective RF which couples to the local order parameter is approximately $h_0 L^{-d/2}$. Now, because the order parameter is changing on a length scale, the elastic energy term is of the form $(Q/L)^2$. Combining the ideas of Landau and those of Imry and Ma, it was

shown, that for low order parameters $Q < ch_0/b^2$, the correlation length L is about a molecular length scale [7]. The free energy advantage is as though there were fixed nematic fields on the molecules, and it is negatively linear in Q . There is an energy cost in changing molecular orientation from point to point, but this is

negligible because it is proportional to Q^2 . Thus, for the isotropic phase the effect in this mean field consideration is roughly the same whether the imposed field is random or fixed.

Let us estimate under which conditions random fields are relevant and are getting a dominant contribution for the ground state configurations. We divide the system into blocks of linear size L . As we have seen, the characteristic value of the RF in this block (averaged over realization) could be defined by $h = h_0 L^{-d/2}$. In the case when the fields can be considered as the dominant factor, the order parameter does not depend on the temperature and it happens for $h > \tau^{\beta\delta}$. Now it is easy to estimate the characteristic size of the block up to which the RF can dominate: $L < h_0^{2/d} \tau^{-2\beta\delta/d}$. On the other hand, the approximation we are using is correct only on length scales much larger than the fluctuation region $\xi \propto \tau^{-\nu}$. Thus, we have another bound for L : $L > \xi$. Therefore, the temperature region where RF effects cannot be ignored is,

$$|\tau| < (ch_0^2)^{1/(2\beta\delta-d\nu)} \equiv \tau_h. \quad (5)$$

Such a region of temperatures near T_c exists only if $2\beta\delta > d\nu$. This value of τ_h can be interpreted as the estimate for the temperature interval around T_c in which the order parameter configurations are essentially defined by the random fields.

In the mean field theory, using Landau critical exponents, the above nontrivial temperature interval τ_h exists only at dimensions $d < 6$ and equals $\tau_h = (ch_0^2)^{2/(6-d)}$. These simple arguments hold only in the approximation where critical fluctuations can be neglected. Thus, the temperature region τ_h where disorder induces a finite correlation length $\xi(h_0) \propto (ch_0^2)^{-1/(6-d)}$ is correct in this regime only.

It is easy to estimate the Ginzburg criterion of the applicability of this approximation. For our model (1), one can get $\tau_G \propto \max[b^{4/(6-d)}, c^{2/(4-d)}]$, and the above result is valid only for $\tau > \tau_G$. On the other hand, the Ginzburg temperature region is larger than the metastable interval of the first order I-N phase transition $\tau_G > b^2/c$. For weak RF such that $\tau_h < \tau < \tau_G$, critical exponents get renormalized by thermal fluctuations, and in the region $\tau < \tau_h$, RF fluctuations are important as well.

The following qualitative arguments may be constructed. Actually, multiple global solutions of the saddle point Eq. (3) can appear due to the double-well local potential. This potential has two local minima for $T_0 < T < T^*$ and for the values of the field $h < h_c$. At temperatures above T^* , the disordered local minima

solution is unique. Just below T^* , however, multiple local minima solutions appear. The energy of the nematic solution is higher than typical energy of the disordered solutions. At further temperature lowering, the interaction of the local minima solutions is getting not small, and we may expect the nontrivial behavior. Like in spin-glasses [15], there is a large number of the disorder dependent local energy minima. In contrast to the usual spin-glass phase, these minima probably are separated by finite energy barriers. Therefore, it is possible to expect the existence of a finite temperature interval between isotropic and nematic phases where the glassy-type behavior occurs. In this state the standard nematic order parameter equals zero, $[\langle Q \rangle]_{av} = 0$, but the bilinear average $[\langle Q \rangle^2]_{av}$ is different from zero at all temperatures and plays the role of the order parameter of the nematic glass. At the same time, the application of external magnetic field H restores the long-range orientational order, and the magnetic field threshold is determined from the condition that the nematic coherence length $\xi_H \propto (\chi_a H^2)^{-1/2}$ is less than the disorder induced correlation length $\xi(h_0)$. Here, χ_a is the anisotropy of the diamagnetic susceptibility of the nematic.

In the glass-type phase, thermodynamics is defined by numerous disorder dependent local energy minima. In such a situation the perturbation theory and the usual RG approach in its traditional form that gives the correct result for the Hamiltonian with only one minimum cannot be used. The most developed technique in this case is the Parisi replica symmetry breaking method [16]. Using this technique, it has been proven that for the N -component ($N \gg 1$) spin systems with RF, the usual scaling replica-symmetry solution is unstable with respect to the replica symmetry breaking in the phase transition point. Moreover, it turns out that the spin-glass transition, which is believed to take place at replica symmetry breaking temperature, always precedes the low temperature phase and obeys the equation $\tau_{RSB} \propto (h_0^2)^{4/(6-d)}$ [17]. If we compare τ_{RSB} with a RF controlled temperature region τ_h , we see that $\tau_h > \tau_{RSB}$. It is not clear whether replica symmetry breaking occurs in the whole RF critical region τ_h , or is restricted to the much smaller temperature interval.

Now we consider the disordered I-N model, defined by Eq.(1) within the high-temperature, i.e., isotropic phase. A direct analysis of the Landau-de Gennes model written in terms of the order parameter is often superior in understanding the critical properties of the transition and the high-temperature phase. We assume the existence of rather strong fluctuations of the order parameter in the isotropic phase near the I-N transition, for which experimental evidence exists [18]. It is easy to show that all five independent tensor components are allowed to fluctuate in the isotropic phase in the same manner. This has considerably simplified the

calculations in comparison with the nematic phase. On the other hand, the Landau-de Gennes Hamiltonian has cubic and quartic interaction terms, and one more is the RF term. Really, there are three length scales in the fluctuation theory. Namely, $\xi_c \propto c^{-1/(4-d)}$, $\xi_b \propto (b^2)^{-1/(6-d)}$ and $\xi_h \propto (ch_0^2)^{-1/(6-d)}$.

Let one remove the fast modes and rewrite the Hamiltonian in terms of the block order parameter, corresponding to the scale $L = al$. Here a is the ultraviolet cutoff, and $l > 1$. Then we make rescaling such a way that the Hamiltonian would restore its initial form with new constants $b(L)$, $c(L)$, and $h_0(L)$. Dimensional analysis provides estimations

$$b(L) = l^{(6-d)/2} b(a), \quad c(L) = l^{4-d} c(a), \quad h_0(L) = l h_0(a). \quad (6)$$

If one considers the combination $\Delta = ch_0^2$ as a new parameter, we immediately get

$$\Delta(L) = l^{6-d} \Delta(a). \quad (6a)$$

Iteration until $\Delta(L_0) = 1$ yields $L_0 = \xi_h$, i.e., the length scale beyond which the RF fluctuations are significant. The same arguments are true for the order parameter fluctuations coming from cubic term in (1). The quartic term is an irrelevant variable in the RG sense. Hence, the two length scales are important for I-N phase transition near $d = 6$. Thus we interpret this result physically by noting that sufficiently close to T_c , the dominant disordering agent is not the RF only, but the thermal fluctuations caused by cubic interaction also. Of course, eqs. (6) are not exact, and corrections to the renormalization due to the interaction are necessary. The leading corrections to equations (6) and (6a) are proportional to quadratic forms of Δ and b^2 . Using the RG method for disordered systems, recursion relations are established for the parameters of the effective replica Hamiltonian. Then replica symmetry is assumed and the RG equations become simple functions of replica number. In that respect, the use of replica is a trick of diagram counting. One can generally establish identical RG equations directly by considering disorder correlation functions, a method which is usually called a replica symmetry perturbation theory. After standard RG transformations, the one-loop equations in differential form are the following

$$\frac{dr}{d \ln L} = (2 - \eta)r - \frac{7}{6} b^2 (1 - 2r) + 7\Delta(1 - 2r), \quad (7a)$$

$$\frac{d \ln b^2}{d \ln L} = \varepsilon - 3\eta - b^2 - 24\Delta, \quad (7b)$$

$$\frac{d \ln \Delta}{d \ln L} = \varepsilon - 3\eta + \frac{22}{3} b^2 - 26\Delta. \quad (7c)$$

Here we put $n = 3$ for a nematic liquid crystal.

The exponent η determines the behavior of the two-point correlation function $G(q)$, which is defined by means of the relation

$$G(q) = [\langle Q(q)Q(-q) \rangle]_{av} - [\langle Q(q) \rangle \langle Q(-q) \rangle]_{av}. \quad (8)$$

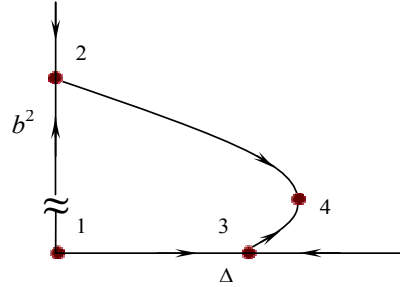
At the critical point, $G(q)$ diverges as $q^{\eta-2}$, and to the lowest order in the perturbation expansion,

$$\eta = 7b^2/18. \quad (9)$$

Inserting this expression into (7), we find that the fixed points $\mu(b^2, \Delta)$ of the RG equations are given by $\mu_0(0,0)$, $\mu_b(6\varepsilon/13,0)$, $\mu_\Delta(0,\varepsilon/26)$, and $\mu^*(6\varepsilon/613, 25\varepsilon/613)$. The RG flow diagram in the (b^2, Δ) plane is illustrated in figure.

In addition to the trivial Gaussian fixed point μ_0 , these equations possess three nontrivial fixed points. The fixed point μ_b describes the critical behavior of the pure nematic and the coefficient r at this point is greater than zero. Thus fixed-point Hamiltonian has a minima at $Q = 0$ and at $Q \approx b/c$. The first-order transition occurs if the order parameter falls into the later deep minimum. It is likely that the μ_b fixed point corresponds to the critical fluctuations about the metastable minimum at $Q = 0$ [19]. The fixed point μ_Δ is exactly the RF Heisenberg fixed point for the five component $O(N)$ model and it describes the RF behavior at the isolated Landau point on the phase diagram, where $b = 0$ [20]. All the above fixed points are unstable.

The only stable fixed point is μ^* , that controls the behavior of the relevant parameters of the Hamiltonian below six dimensions, and corresponds to the replica symmetric phase with an infinite correlation length. The fixed point value of r is less than zero, i.e., the transition temperature is renormalized upward. Unfortunately, there is no unique energy extremum in this case. If the RG flows are smooth in the neighborhood of $r = 0$, as is usually assumed, then it should be reasonable to extrapolate the flows from $r \geq 0$ (where the RG equations are presumably valid) to the desired region near the fixed point.



Phase diagram of the RG equations (7b) and (7c). The arrows show the direction of the renormalization group flows. Points 1, 2, 3, and 4 stand for the fixed points μ_0 , μ_b , μ_Δ , and μ^* , respectively

Isotropic Phase of Nematics in Porous Media

Let us now determine the critical exponents associated with the fixed point μ^* . The correlation length exponent ν follows directly from Eq. (7a)

$$\nu^{-1} = 2 + \frac{35}{18}b^2 - 14\Delta. \quad (10)$$

To obtain an expression for the critical exponent for the susceptibility γ , we recall that under the RG iterations the two-point correlation function behaves like [21]

$$G = \exp(2\ell - \int_0^\ell \eta(\ell') d\ell') G_{\ell'}, \quad \ell = \ln L.$$

Using the perturbation expansion for G_ℓ one can obtain

$$\gamma = 1 - \frac{7}{6}b^2 + 7\Delta. \quad (11)$$

The specific heat exponent α can be calculated from a singular part of the free energy

$$F_s \propto \int_0^{\ell^*} \ln(1 + \tilde{r}(\ell)) e^{-d\ell} d\ell,$$

where $\tilde{r}(\ell)$ is the coefficient of the Q^2 term in Hamiltonian averaged over the distribution of the RF, and $\ell^* = \ln \xi$. Evaluating the above integral to leading order we find $F_s \propto \tau^{2-\alpha}$, where

$$\alpha = \frac{6-d}{2} + \frac{7}{4}b^2 - 14\Delta. \quad (12)$$

Equations (9)-(12) yield the usual “thermodynamic” scaling law $\gamma = \nu(2 - \eta)$, and modified hyperscaling law $2 - \alpha = \nu(d - \theta)$ with the “violation of hyperscaling” exponent $\theta = 2 - \eta$. This result is valid at first order in $\varepsilon = 6 - d$.

In the presence of the RF, the quantity $[\langle Q(0) \rangle \langle Q(x) \rangle]_{av}$ is non-zero even in phases where $[\langle Q(x) \rangle]_{av}$ vanishes. There are therefore two distinct correlation functions to consider. The first is the analog of the usual connected correlation function G (8), and the second is the disconnected function and is specific for random systems. It measures the fluctuations in the local quenched order parameter

$$C_s(q) = [\langle Q(q) \rangle \langle Q(-q) \rangle]_{av} - [\langle Q(q) \rangle]_{av} [\langle Q(-q) \rangle]_{av} \quad (13)$$

and diverges at small q as $C_s \propto q^{\tilde{\eta}-4}$.

To compute the exponents describing the behavior of the disconnected correlation function near T_c , we can write $C_s(q) = G^2(q)D(q)$ [22]. Here $D(q)$ is related to a dressed spectral function $h_0^2(q)$ of the RF fluctuations. If $h_0^2(q) \propto q^{-\lambda_\Delta}$ for $q\xi \gg 1$, then one obtains $C_s(q) \propto q^{2\eta-4-\lambda_\Delta}$ and $\tilde{\eta} = 2\eta - \lambda_\Delta$. Note that the choice $\lambda_\Delta = 0$ yields $\tilde{\eta} = 2\eta$, a value which is on the limit of the exact inequality $\tilde{\eta} \leq 2\eta$, due to [23]. Another relation was suggested by consideration of the RF contribution to the free energy in a correlation volume which scales as ξ^θ . In contrast, for the pure system the characteristic scale of variation of the effective free energy is simply set by the thermal fluctuations, i.e., $\propto T$. On the other hand, if the local order parameter was uncorrelated with the RF this would scale as $\xi^{d/2-\beta/\nu}$. Here the factor $\xi^{d/2}$ is coming from the scaling of the total RF. The relation for β is easy to find from scaling the disconnected correlation function in a real space $2\beta = (d - 4 + \tilde{\eta})\nu$. Since the correlations could be included by additional factor $\xi^{\lambda_\Delta/2}$, corresponding to $h_0^2(q) \propto \xi^{\lambda_\Delta}$ for $q\xi \ll 1$, we expect that $\theta = 2 - \eta + \lambda_\Delta$. The case $\lambda_\Delta = 0$ yields $\theta = 2 - \eta$, which is on the limit of another inequality $\theta \geq 2 - \eta$ [24]. Thus for the violation of hyperscaling exponent we recover the result $\theta = 2 + \eta - \tilde{\eta}$ [14,17,24,25].

In our one-loop calculations, the critical exponent η is determined by the coupling b (9), and $\tilde{\eta} = 2\eta$. The Δ dependent term appears in $C_s(q)$ only in the two-loop diagrams, as does the cross term $b^2\Delta$. Using the diagrammatic expansion for $D(q)$ we find

$$D(q) = h_0^2 \left(1 + \frac{7}{3} \Delta (b^2 - 6\Delta) \ln q \right), \quad (14)$$

and now the particular value $\lambda_\Delta = (7/3)\Delta(6\Delta - b^2)$ is non-zero to the second order in $\varepsilon = 6 - d$. All diagrams in (14) must be disconnected before averaging over the RF distribution.

The value for η is coming from the diagrams contributing to two-point correlation function $G(q)$. There are three types of terms in the perturbation expansion. The first and second terms are a double power in b^2 and Δ , respectively. The third term is a double product $b^2\Delta$ contribution. In contrast to the disconnected correlation function, all diagrams here are connected before configuration averaging. Note that not all of them are tree-like diagrams, as it is the case for the $O(N)$ model. Formally we can divide all these contributions and write $\eta = \eta_1(b^2, b^4) + \eta_2(\Delta^2, b^2\Delta)$. In the one-loop approximation, $\eta_2 = 0$ and η_1 is the critical exponent to linear order in ε (9). A straightforward evaluation of

the RF depended diagrams leads to expression $\eta_2 = \lambda_\Delta$. This means that for the hyperscaling violation exponent we get $\theta = 2 - \eta_1$.

More generally, in the vicinity of the fixed point μ^* the random correlation function is proportional to c^{-1} for small c . Therefore, in the critical region one expects that the random correlation function will scale as $C_s(q, \xi, c) = c^{-1} e^{(2-\eta-\lambda_c)\ell} C_s(e^\ell q, e^{-\ell} \xi)$, where λ_c is the scaling exponent of the irrelevant parameter c . For $q = 0$ one has the behavior $C_s(0, \tau) \propto \tau^{-\tilde{\gamma}}$ with $\tilde{\gamma} = \nu(2 - \eta - \lambda_c)$. Using the relation $\tilde{\gamma} = \nu(4 - \tilde{\eta})$ that follows from the scaling at small q and $\tau = 0$ we can write $\lambda_c = \tilde{\eta} - \eta - 2$. We see that $\lambda_c = -\theta$. This result is quite obvious. Really, on the other hand, the perturbation expansion for free energy is a double power series in b^2 , c , and h_0^2 . The first terms in this series behave like $b^2 h_0^2$ and ch_0^4 , or for large h_0^2 they both are proportional to h_0^2 as well. Thus, for the free energy density we have $F(h_0^2, \tau) = \tau^{\nu d} f(h_0^2 \tau^{-\varphi})$, where φ is the crossover exponent. If we conclude that f is a linear function of its argument for small τ , as it follows from the perturbation expansion, one can get $F(h_0^2, \tau) \propto \tau^{\nu(d-\varphi/\nu)}$, hence $\theta = \varphi/\nu$. The crossover exponent is related to the scaling of the RF near the fixed point μ^* : h_0^2 increases as $\exp(\ell\varphi/\nu)$. Writing the recursion relation for h_0^2 up to two-loop order, as we have done, Eq.(14), we again find $\varphi/\nu = 2 - \eta + \lambda_\Delta = 2 - \eta_1$.

All our results for critical exponents suggest that $\tilde{\eta} \neq 2\eta$, in agreement with the three-exponent scaling picture [24,25]. For example, the exponent scaling gives for the ratio $C_s(0)/G^2(0) \propto \xi^{\lambda_\Delta}$, which would diverge unless $2\eta = \tilde{\eta}$ is valid. However, this divergence is too weak to be detected, and thus this ratio may be concerned as a constant, and the concept of no self-averaging in RF systems is expected [26].

We have considered the effects of a RF (field conjugate to the order parameter) on an I-N phase transition using the $\varepsilon = 6 - d$ expansion method. We have found the novel RF fixed point that proceeds from the existence of two relevant variables in the RG approach, namely, RF and quartic interaction product, Δ , and the cubic interaction, b , which is special to a nematic liquid crystal. The first involves the effects of the RF, while the latter involves those of thermal disorder. These two agents of disorder give comparable contributions to the problem. In the pure nematic, when $h_0 = 0$, the zero cubic term means that the system is located at an isolated Landau point at the phase diagram. This point is unstable with respect to b . The interpretation of this instability depends on the

existence of a stable μ_b fixed point. As was mentioned, this fixed point corresponds to critical fluctuations about the metastable minimum at $Q = 0$. When non-zero h_0 is switched on, Δ scales as $\exp(50\varepsilon\ell/13)$ near the pure fixed point. Then Δ is renormalized toward a fixed point μ^* , and all critical exponents are changed. As we believe, this fixed point governs the critical behavior at the transition from isotropic to the replica symmetric phase, that precedes the replica symmetry breaking phase. Such kind of two step scenario is likely to take place in the Ising spin glass in an external magnetic field [27]. The location of this nontrivial random fixed point on a phase diagram is quite close to the fixed point μ_Λ with zero cubic term (we may call this point a random isolated Landau point). This indicates that the critical behavior of the isotropic nematic in RF is like the behavior of the RF Heisenberg model for the five component order parameter. The independent calculation of the critical exponents shows that the dimensional reduction in the hyperscaling relations for the RF isotropic nematic contains the shifted value $d - 2 - \eta + \tilde{\eta}$ instead of d . The so-called “three exponent scaling” appears in the second order in ε . The model for studying the replica symmetry breaking transition from the replica symmetric phase is clearly necessary to perform further investigations.

I would like to thank Professor Boris Kochelaev for stimulating my interest in the problem of disorder in the soft condensed matter systems, and for acquainting me with the mysterious liquid crystals.

References

1. *Liquid Crystals in Complex Geometries*, edited by G.P. Crawford and S. Zumer (Taylor Francis, London, 1996).
2. X.-I. Wu, W.I. Goldburg, M.X. Liu, and J.Z. Xue, Phys. Rev. Lett. **69**, 470 (1992); T. Bellini, N.A. Clark, and D.W. Schaefer, *ibid.* **74**, 2740 (1995).
3. A. Maritan, M. Cieplak, T. Bellini, and J.R. Banavar, Phys. Rev. Lett. **72**, 4113 (1993); A. Maritan, M. Cieplak, and J.R. Banavar, (Ref. [1]), Chap.22.
4. K. Uzelac, A. Hasmy, and R. Jullien, Phys. Rev. Lett. **74**, 422 (1995).
5. G.S. Iannacchione, S. Qian, D. Finotello, and F.M. Aliev, Phys. Rev. E **56**, 554 (1997).
6. A. Mertelj and M. Copic, Phys. Rev. E **55**, 504 (1997).
7. D.J. Cleaver, S. Kralj, T.J. Sluckin, and M.P. Allen, (Ref. [1]), Chap.21.
8. Y. Imry and S.K. Ma, Phys. Rev. Lett. **35**, 1399 (1975).
9. E.I. Kats, JETP Lett. **65**, 725 (1997).
10. L. Radzihovsky and J. Toner, Phys. Rev. Lett. **79**, 4214 (1997).
11. J. Chakrabarti, Phys. Rev. Lett. **81**, 385 (1998).
12. D.E. Feldman, Phys. Rev. Lett. **84**, 4886 (2000).

13. N. Uchida, Phys. Rev. E **60**, R13 (1999).
14. T. Nattermann, in *Spin glasses and random fields*, edited by A.P. Young (World Scientific, Singapore, 1998), P.277; e-print cond-mat/9705295.
15. M. Mezard, G. Parisi, and M. Virasoro, *Spin-Glass Theory and Beyond*, (World Scientific, Singapore, 1987); Vik.Dotsenko, Phys. Usp. Fiz. **38**(5), 1 (1995).
16. G. Parisi, J. Phys. A **13**, 1101 (1980).
17. C. De Dominicis, H. Orland, and T. Temesvari, J. Phys.I France **5**, 987 (1995)
18. P.G. de Gennes and J. Prost, *The Physics of Liquid Crystals*, (Clarendon, Oxford, 1993).
19. R.G. Priest and T.C. Lubensky, Phys. Rev. B **13**, 4159 (1976).
20. P.B. Vigman, A.I. Larkin, and V.M. Filev, Sov.Phys. JETP **41**, 944 (1976).
21. J. Rudnick and D.R. Nelson, Phys. Rev. B **13**, 2208 (1976).
22. G. Grinstein, Phys. Rev. Lett. **37**, 944 (1976).
23. M. Schwartz and A. Soffer, Phys. Rev. Lett. **55**, 2499 (1985).
24. D. Fisher, Phys. Rev. Lett. **56**, 416 (1986).
25. J. Villain, J. Phys.(Paris) **46**, 1843 (1985).
26. A. Aharony and A.B. Harris, Phys. Rev. Lett. **77**, 3700 (1996).
27. T. Temesvari and C. De Dominicis, Phys. Rev. Lett. **89**, 097204 (2002).

НЕОДНОРОДНЫЕ СВЕРХПРОВОДЯЩИЕ СОСТОЯНИЯ И ПРОЦЕССЫ ПЕРЕБРОСА В НАНОСТРУКТУРАХ ФЕРРОМАГНЕТИК-СВЕРХПРОВОДНИК

М.Г. Хусаинов

Казанский государственный университет, Казань

*Казанский государственный технический университет, филиал «Восток»,
Чистополь*

Для слоистых структур ферромагнитный металл/сверхпроводник (FM/S) развита теория эффекта близости, учитывающая конкуренцию между одномерными (1D) и трехмерными (3D) реализациями состояния Ларкина-Овчинникова-Фульде-Феррелла (ЛОФФ). Сверхпроводимость в FM/S-системах оказывается суперпозицией БКШ-спаривания со знаком постоянной парной амплитудой в S-слоях и спаривания по механизму ЛОФФ с осциллирующей волновой функцией в FM-слоях. Показано, что немонотонное поведение критической температуры T_c в двухслойных контактах FM/S обусловлено колебаниями потока куперовских пар через S/FM-границу, вызванными каскадом фазовых переходов 3D-1D-3D. Появление новых 3D состояний ЛОФФ связано с включением 2D процессов переброса импульса пар вдоль FM/S-границы. Парная амплитуда таких неоднородных состояний осциллирует вдоль FM/S-границы, что приводит к сильному затуханию ее поперечных 1D-осцилляций и к существенному сглаживанию зависимости T_c от толщины FM-слоя d_f . Для сверхрешеток FM/S предсказаны новые π -магнитные 0π и $\pi\pi$ состояния ЛОФФ, обладающие, при определенных условиях, более высокой T_c , чем ранее известные 0-магнитные 00 и $\pi 0$ состояния ЛОФФ. Показано, что при толщине S-слоев d_s , меньшей порогового значения d_s^{π} немонотонное поведение T_c сверхрешеток обязано каскаду фазовых переходов 3D(0π)-1D($\pi\pi$)-1D(0π). При $d_s > d_s^{\pi}$ природа осцилляций T_c связана с другой цепочкой переходов 3D(00)-1D($\pi 0$)-3D($\pi 0$). Получено хорошее количественное описание известных экспериментальных фазовых диаграмм.

1. Введение

Конкуренция сверхпроводящих и магнитных состояний в слоистых структурах ферромагнитный металл/сверхпроводник (FM/S) порождает ряд новых нетривиальных явлений, совместное наблюдение которых в однородных материалах зачастую попросту невозможно. Как свидетельствуют эксперименты [1-5], сосуществование сверхпроводимости и ферромагнетизма в мульти-слоях FM/S проявляется в качественно разном поведении зависимости критической температуры T_c от толщины ферромагнитных прослоек d_f для одних и тех же по составу структур FM/S. В частности, если в одних экспериментах со сверхрешетками Fe/V [1] и Gd/Nb [2] быстрое начальное

понижение T_c с ростом d_f сменяется последующим выходом на плато, то в других экспериментах на этих же системах ([3] и [4,5] соответственно) выходу на плато предшествует осциллирующее поведение $T_c(d_f)$. Первые теоретические интерпретации немонотонного поведения $T_c(d_f)$ основывались на предсказанной в работах [6,7] смене типа сверхпроводимости с традиционного 0-фазного на π -фазный, где знак параметра порядка Δ при переходе через прослойки FM меняется на противоположный. Однако теории [6,7], ограниченные случаем высокой прозрачности FM/S-границы и крайне грязным пределом ферромагнитного металла, не позволяли с единых позиций описать два различных типа поведения зависимости $T_c(d_f)$. Более того, недавно было обнаружено, что немонотонное поведение $T_c(d_f)$ имеет место также в трехслойных структурах Fe/Nb/Fe [8,9] и Fe/Pb/Fe [10], где π -фазная сверхпроводимость в принципе невозможна. Последнее предполагало наличие нового механизма осцилляций критической температуры, не связанного с переходами между 0- и π -фазными сверхпроводящими состояниями. Поэтому нами [11-13] была разработана теория эффекта близости, свободная от перечисленных выше ограничений на прозрачность границы раздела FM/S и чистоту металлов FM и S. Природу осцилляций $T_c(d_f)$ мы связывали с колебаниями потока куперовских пар на FM/S-границе, возникающими в силу одномерных (1D) осцилляций парной амплитуды поперек FM-слоя, приводящих к квантовой связи между его границами. Это позволило не только объяснить причину качественного различия в поведении T_c в экспериментах [1-5,8-10], но и предсказать ряд новых эффектов, таких как ярко выраженные осцилляции $T_c(d_f)$ и периодически возвратная сверхпроводимость. Однако, за исключением двух сообщений [14,15] о затухающих осцилляциях $T_c(d_f)$ в сверхрешетках Co/Nb и Co/V, данные явления пока не нашли своего опытного подтверждения в последних экспериментах [16-21]. В то же время результаты этих экспериментов свидетельствуют о возможности широкого спектра других вариантов немонотонного поведения T_c с ростом d_f : от быстрого стремления к нулю в трислоях Fe/Pb/Fe [16] и сверхрешетках Ni/Nb [17], плавного выхода на константу в сверхрешетках $V_{1-x}Fe_x/V$ [18] до ступенчатого срыва на плато в бислоях Fe/Nb [19] и мультислоях Fe/Nb [20] или выхода на него через глубокий минимум в других трислоях Fe/Pb/Fe [10]. Кроме того, отметим первое наблюдение явления возвратной сверхпроводимости в трислоях Fe/V/Fe [21], возможность которого также предсказывалась в наших работах [11-13].

Заметим что, на опыте и для двухслойных и для мультислойных структур FM/S часто оказывается возможным лишь один локальный максимум в зависимости $T_c(d_f)$. Причина, на наш взгляд в том, что прежние теории [6,7,11-13], предсказывающие множественные осцилляции $T_c(d_f)$, пригодны лишь для квазиодномерных FM/S-систем, где пространственными изменениями парной амплитуды вдоль FM/S-границ можно пренебречь. Реальные же FM/S-системы, такие как Fe/V или Gd/Nb, которые исследуются в перечисленных выше

экспериментах, являются трехмерными (3D). Поэтому в них необходимо учитывать пространственные вариации волновой функции пар не только поперек слоев FM и S, но и вдоль границ раздела FM/S.

Картина сверхпроводящего состояния в контакте чистых металлов FM и S такова, что в S-слое имеет место синглетное спаривание квазичастиц по механизму БКШ из состояний ($\mathbf{p}\uparrow, -\mathbf{p}\downarrow$) с нулевым суммарным импульсом. Из-за эффекта близости и в меру прозрачности границы S/FM происходит импорт спаривательного взаимодействия из S-слоя в FM-слой на расстояния порядка температурной длины когерентности $\xi_{JT} = v_f/2\pi T$. Однако большое обменное расщепление Ферми-поверхности $2I \gg \pi T_c$ изменяет условия спаривания в ферромагнетике. В FM-слое спариваться будут квазичастицы из изознергетических состояний ($\mathbf{p}\uparrow, -\mathbf{p} + \mathbf{k}\downarrow$) с отличными по абсолютной величине импульсами, где $k \approx 2I/v_f$ при $2I \ll E_f$, а E_f и v_f - фермиевские энергия и скорость, соответственно. Данное состояние известно как состояние Ларкина-Овчинникова-Фульде-Феррелла (ЛОФФ) [22,23]. Специфика состояния ЛОФФ с отличным от нуля когерентным 3D импульсом пар $\mathbf{k}$ такова, что параметр порядка $\Delta(\mathbf{r})$ и парная амплитуда $F(\mathbf{r})$ в FM-слое являются периодическими функциями координат. Это означает [22,23], что пары ЛОФФ образуют «кристаллическую» решетку с размером элементарной ячейки $2\pi a_f$ ($a_f = k^{-1}$ - длина спиновой жесткости), а их волновая функция удовлетворяет теореме Блоха. Поэтому импульс пар $\mathbf{k}$ в действительности является *квазиимпульсом*, определенным с точностью до вектора обратной решетки $\mathbf{G}$, модуль которого кратен ее периоду $g_0 = 1/a_f$. Таким образом, величина когерентного импульса пар k по сути определяет период обратной решетки ЛОФФ g_0 .

При $T < T_c$ в состоянии равновесия число пар БКШ в S-слое и число пар ЛОФФ в FM-слое в среднем постоянны. В силу зарядовой нейтральности всякий переход пары БКШ из S-слоя в FM-слой сопровождается обратным переходом пары ЛОФФ. С пересечением границы раздела FM/S обе пары распадаются, так как условия спаривания БКШ и ЛОФФ существенно различны. Однако, из-за постоянства числа пар, эти пары воссоздаются вновь, но уже из квазичастичных состояний, отвечающих изменившимся условиям спаривания. Приведенная картина не изменится, если считать, что через FM/S границу происходит обмен парами БКШ и ЛОФФ, который сопровождается их взаимным превращением друг в друга. При этом возникают закономерные вопросы. Что происходит с избыточным импульсом $\mathbf{k}$ пар ЛОФФ, превращающихся в S-слое в пары БКШ? И, напротив, откуда у пар БКШ, превращающихся в пары ЛОФФ в FM-слое, появляется результирующий импульс $\mathbf{k}$?

Ответ, на наш взгляд, прост: кристаллическая решетка пар ЛОФФ играет самую активную роль в процессах перехода и взаимного превращения пар БКШ

Неоднородные сверхпроводящие состояния и процессы переброса...

и ЛОФФ на границе FM/S (см. рис. 1). Действительно пара ЛОФФ, уходя из FM-слоя в S-слой, отдает избыточный импульс $\mathbf{k}$ решетке ЛОФФ и превращается в пару БКШ. Напротив, пара БКШ, переходя из S-слоя в FM-слой, приобретает у решетки ЛОФФ добавочный импульс $\mathbf{k}$ и становится парой ЛОФФ. Таким образом, процессы перехода и взаимного превращения пар на FM/S-границе являются *процессами рассеяния с перебросом*, при которых квазиимпульс пар $\mathbf{k}$ сохраняется с точностью до вектора обратной решетки ЛОФФ $\mathbf{g}$.

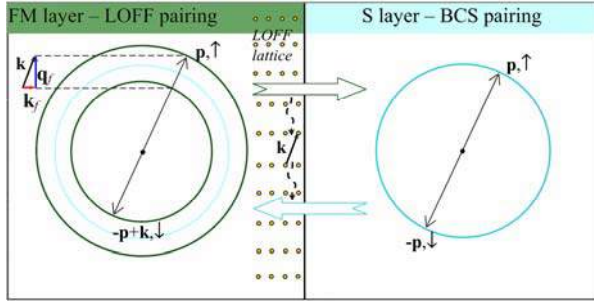


Рис. 1. Процессы переброса импульса при взаимном превращении пар ЛОФФ и БКШ на границе раздела FM/S

В плоском контакте FM/S между изотропным ферромагнетиком, занимающим область $-d_f < z < 0$, и сверхпроводником, занимающим область $0 < z < d_s$, парная амплитуда $F(\mathbf{p}, z)$, описывающая сверхпроводящие корреляции в FM-слое, должна удовлетворять условиям периодичности. Данные условия зависят от вида симметрии решетки пар ЛОФФ. Конкретный вид решетки ЛОФФ (полоса, куб, гексагональная структура и т.д.) при одном и том же значении k находится минимизацией свободной энергии, включающей слагаемые более высокого порядка, чем $|\Delta(\mathbf{r})|^2$ (см. [22]). Дело в том, что состояние ЛОФФ бесконечно раз вырождено по направлению вектора $\mathbf{k}$ [22,23]. В простейшем случае, если решетка ЛОФФ простая кубическая и наличие поверхности раздела FM/S ее не искажает, условия периодичности имеют вид $F(\mathbf{p} + \mathbf{a}, z) = F(\mathbf{p}, z + a) = F(\mathbf{p}, z)$, где $a = 2\pi a_f$ – период решетки ЛОФФ, а $\mathbf{p}$ – двумерный радиус-вектор в x - y плоскости контакта FM/S. Далее считая, что $a \ll d_f \ll \xi_{f\parallel}$, мы можем представить парную функцию в FM-слое в виде разложения Фурье по векторам обратной решетки ЛОФФ

$$F_f(\mathbf{p}, z) = \sum_{\mathbf{q}_f, k_f} F_f(\mathbf{q}_f, k_f) \exp(i\mathbf{q}_f \mathbf{p}) \cos k_f(z + d_f), \quad (1)$$

где $q_{f\alpha}$ и k_f – компоненты вектора обратной решетки $\mathbf{G}$, пробегающие значения, кратные $(2\pi/a) = 1/a_f$, т.е. $q_{f\alpha, y} = m_{x, y}/a_f$, $k_f = m_z/a_f$, а $m_{x, y, z}$ – целые

числа. Ряд (1) записан в виде, учитывающем отсутствие потока пар ЛОФФ через внешнюю границу FM-слоя $z = -d_f$. С другой стороны, пренебрегая в (1) сильнозатухающими высшими гармониками ряда Фурье, из условия $q_f^2 + k_f^2 = k^2 = 1/a_f^2$ получаем простое правило отбора

$$m_x^2 + m_y^2 + m_z^2 = 1. \quad (2)$$

Из соотношения (2) следуют два возможных состояния или решетки ЛОФФ в контакте FM/S: одномерная (1D) с $q_f = 0$, $k_f = 1/a_f$ и двумерная (2D) с $q_f = 1/a_f$, $k_f = 0$. При этом, в силу изотропии FM/S-системы, в плоскости x - y нет выделенного направления и суммирование в (1) в 2D случае ведется по $m_{x,y} = 0, \pm 1$, удовлетворяющим условию $m_x^2 + m_y^2 = 1$. Физически понятно, что учет конкуренции между 1D и 2D состояниями ЛОФФ будет эквивалентен выбору вида (1D или 2D) решетки пар ЛОФФ при данных толщинах слоев FM и S путем минимизации свободной энергии системы.

Также из физических соображений ясно, что в S-слое, где обменное поле I и период обратной решетки ЛОФФ $g_0 = 1/a_f$ равны нулю, парная амплитуда $F_s(\mathbf{p}, z)$ не будет зависеть от $\mathbf{p}$, а будет описывать лишь убывание параметра порядка с приближением к границе раздела FM/S на расстояния z , меньшие $\xi_{sT} = v_s / 2\pi T$, т.е.

$$F_s(\mathbf{p}, z) = F_s(k_s) \cos k_s(z + d_s), \quad (3)$$

где $q_s = 0$. Связь между волновыми числами k_s и k_f , q_f должна определяться из краевой задачи, включающей дифференциальные уравнения на парные амплитуды $F_s(\mathbf{p}, z)$, $F_f(\mathbf{p}, z)$ и граничные условия на поверхности раздела $z = 0$.

До сих пор, начиная с пионерских работ Радовича [6] и Буздина [7] с соавторами, а затем и в статьях [11-13, 10, 18, 24], считалось, что парная амплитуда $F(\mathbf{r})$ может изменяться только поперек слоев FM и S, т.е. вдоль оси z . Это соответствовало рассмотренному выше 1D состоянию с $q_f = 0$. Возможность реализации только лишь состояния 1D с $q_f = 0$ была обоснована в работе Демлера, Арнольда и Бисли [24] необходимостью выполнения закона сохранения для компоненты импульса пар в плоскости границы раздела FM/S. Эти авторы считали, что, поскольку импульс пар БКШ в S-слое равен нулю (а значит и $q_s = 0$), то и компонента импульса пар ЛОФФ вдоль FM/S границы должна быть равна нулю (т.е. $q_f = 0$). В грязном пределе такой подход с $q_s = q_f = 0$ приводит к 1D граничным условиям на поверхности раздела FM/S, выведенным нами ранее [13]. Однако, как мы выяснили выше, импульс пар ЛОФФ в действительности является квазиимпульсом. Поэтому $\mathbf{q}_f$ может сохраняться с точностью до вектора обратной решетки ЛОФФ, т.е. может принимать значения 0 и $1/a_f$. Таким образом, наряду с *поверхностными 1D состояниями*, имеют право на реализацию и *поверхностные 2D состояния* ЛОФФ.

Далее, имея в виду реальные дефектные материалы, коротко обсудим влияние примесного рассеяния на приведенную выше картину сверхпроводящего состояния в FM/S контакте. Рассеяние на немагнитных примесях с частотой τ_f^{-1} , которое не влияет на БКШ-спаривание с нулевым суммарным импульсом в S-слое, будет препятствовать возникновению пар ЛОФФ с $k \neq 0$ в FM-слое [25,26]. При этом поперечная компонента импульса пар k_f станет комплексной величиной с $\text{Re } k_f = 1/a_f$ - в 1D случае или 0 - в 2D случае, а $\text{Im } k_f \approx l_f^{-1}$ будет описывать неопределенность в значениях k , т.е. затухание и размытие решетки ЛОФФ в глубине FM-слоя. Поэтому парная амплитуда (1) в относительно чистом ферромагнитном слое с $2l_f > 1$ будет осциллировать с периодом порядка длины спиновой жесткости $a_f = v_f/2I$, затухая на длине свободного пробега $l_f = v_f\tau_f$ от FM/S-границы. В то же время волновая функция куперовских пар в S-слоях будет иметь знакопостоянный характер, но фаза ее будет оставаться произвольной.

По мере повышения концентрации немагнитных примесей в FM-слое волновой тип движения квазичастиц, присущий чистому ферромагнетику с $2l_f > 1$, будет сменяться при $2l_f < 1$ ($l_f < a_f$) диффузионным. Поперечная компонента импульса пар k_f станет при этом плохим квантовым числом, а осцилляции парной амплитуды ЛОФФ, приобретая большое затухание (особенно в 2D ситуации, где $\text{Im } k_f \gg \text{Re } k_f$), перестанут обеспечивать когерентную квантовую связь между двумя границами FM-слоя. Тем не менее, мы полагаем, что след от дискретности решетки ЛОФФ и возможность конкуренции между ее 1D и 2D вариантами реализации должны существенно сказаться как на физике эффекта близости в структурах FM/S, так и на экспериментальных зависимостях $T_c(d_f)$ и $T_c(d_s)$. Следует ожидать, что появление, наряду с уже известными 1D состояниями, новых 2D состояний ЛОФФ с синусоидально модулированной в плоскости FM/S-границы парной амплитудой $F(\mathbf{r})$ будет приводить к увеличению периода ее осцилляций поперек FM-слоев. Когда последний станет больше глубины проникновения куперовских пар в FM-слой, когерентная связь между его границами разрушится, и наблюдаемость осцилляций функции $T_c(d_f)$ значительно уменьшится. Поэтому мы считаем, что конкуренция между старыми 1D и новыми 2D состояниями ЛОФФ должна существенно модифицировать полученную ранее [6,7,11-13,10,18,24] одномерную картину немонотонного поведения критической температуры в структурах FM/S. Поскольку в примесных FM/S системах решетка пар ЛОФФ всегда будет размываться на расстояниях порядка $\text{Im } k_f$ от границы раздела, в чистом виде 2D поведение функции $F(\mathbf{p}, z)$ реализовываться не будет. Поэтому ниже вместо термина "2D состояние ЛОФФ" будем говорить *3D состояние ЛОФФ*, подразумевая, что парная функция $F(\mathbf{p}, z)$ осциллирует в x -у плоскости границы раздела, затухая по оси z в глубине FM слоя.

Далее необходимо особо отметить, что теории эффекта близости [6,7,11-13,10,18,24] для сверхрешеток FM/S или трислоев FM/S/FM совершенно не учитывают обратного влияния сверхпроводимости на магнетизм FM-слоев и взаимную ориентацию их намагниченностей. В то же время одним из авторов (MX) [27-29] для аналогичных структур ферромагнитный изолятор/сверхпроводник (FI/S) было показано, что дальнodelствующий обмен Рудермана-Киттеля-Касуи-Иосиды (РККИ) между соседними FI-слоями через прослойки S приводит к слоистому антиферромагнитному сверхпроводящему состоянию (AFS). В AFS состоянии фазы магнитного параметра порядка в соседних FI-слоях сдвинуты на π , что существенно ослабляет распаривающее действие парамагнитного эффекта обменного поля для S-слоев и повышает T_c слоистой системы. Следует ожидать, что такого рода взаимная подстройка сверхпроводящего и магнитного параметров упорядочения, приводящая к квантовой связи между границами раздела и реализации π -фазного магнетизма, должна иметь место и в сверхрешетках FM/S.

Основная физическая идея здесь такова. В AFS состоянии эффекты распаривания, наведенные в прослойке S антипараллельными обменными полями соседних FM слоев, компенсируют друг друга. Напротив, в ферромагнитном сверхпроводящем (FS) состоянии с параллельными намагниченностями FM слоев их спиновые поляризации в прослойке S усиливают друг друга и могут разрушить сверхпроводимость. Мы ожидаем, что сверхрешетки FM/S с тонкими S-слоями будут иметь в AFS состоянии более высокую критическую температуру, чем T_c в состоянии FS. Причем это будет иметь место как в случае 0-фазной, так и в случае π -фазной сверхпроводимости. С ростом толщины S-слоев π -магнитная связь между FM-слоями будет разрушаться, и взаимная ориентация намагниченностей перестанет сказываться на T_c сверхрешетки FM/S. В этом случае для 1D состояний будут справедливы результаты прежних работ [6,7,11-13]. Таким образом в сверхрешетках FM/S, наряду с известной конкуренцией между 0-фазной и π -фазной сверхпроводимостью, мы ожидаем также конкуренции между 0-магнитными (FS) и π -магнитными (AFS) состояниями. Причем каждое из этих состояний будет обладать как 1D, так и 3D вариантами реализации. Так что сверхпроводящее состояние сверхрешетки FM/S будет результатом сложной конкуренции восьми различных состояний ЛОФФ.

Таким образом, сверхпроводимость в FM/S-контакте является суперпозицией спаривания по механизму БКШ в S-слое и спаривания по механизму ЛОФФ в FM-слое. Исследование взаимной подстройки этих конкурирующих типов спаривания и их обратного влияния на магнитные состояния в структурах FM/S составляет основную цель данной работы. Развиваемая ниже теория эффекта близости для структур FM/S является естественным обобщением наших исследований [11-13] в этой области на трехмерный случай и учитывает взаимодействие ферромагнитных слоев через сверхпроводящие (часть результатов данной работы опубликована в статьях [30-33]). В разделе 2 дается микро-

скопический вывод трехмерных уравнений типа Узделя и соответствующих граничных условий, связывающих поток функции $F(\mathbf{r})$ с ее скачком на границе раздела FM/S. Решение полученной краевой задачи для эффекта близости в FM/S-контакте, приведенное в разделе 3, позволяет найти зависимость критической температуры T_c от параметра $2I\tau_f$, коэффициента прозрачности σ_s границы раздела, а также от толщины ферромагнитного (d_f) и сверхпроводящего (d_s) слоев. В разделе 4 исследована конкуренция между 0-фазным и π -фазным типами сверхпроводимости и магнетизма в сверхрешетках FM/S. Наконец, в последнем разделе проведено обсуждение основных результатов данной работы.

2. Краевая задача для эффекта близости в неоднородной FM/S-системе

В окрестности точки фазового перехода второго рода критическая температура T_c неоднородного сверхпроводника определяется из интегрального уравнения Горькова [34] для параметра порядка $\Delta(\mathbf{r})$

$$\Delta(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) T \sum_{\omega} \int H(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \Delta(\mathbf{r}') d^3 r', \quad (4)$$

где $V(\mathbf{r})$ – потенциал межэлектронного взаимодействия в точке $\mathbf{r}$, а штрих у знака суммы означает обрезание на дебаевской частоте ω_D ; далее $\omega = \pi T(2n + 1)$ – мацубаровская частота, T – температура $n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ и мы полагаем в данной работе $\hbar = k_B = \mu_B = 1$. Ядро $H(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ интегрального уравнения (1) определяется выражением

$$H(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \frac{1}{2} \sum_{\alpha \neq \beta} H_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \frac{1}{2} \text{Tr} \left\langle \bar{g}^{-1} \bar{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \bar{g} \bar{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', -\omega) \right\rangle. \quad (5)$$

Здесь $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ – матричная электронная функция Грина в нормальной фазе, $g = i\sigma_y$, σ_y – матрица Паули, α и β – спиновые индексы ($\alpha \neq \beta$), а угловые скобки обозначают усреднение по всем примесным конфигурациям.

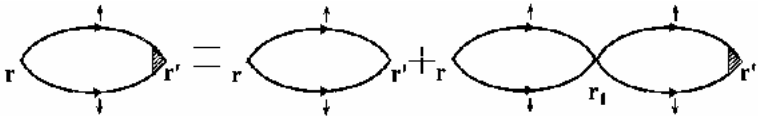


Рис. 2. Диаграммное представление 3D интегрального уравнения (6) для вершинной части $H(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$. Линии со стрелками отвечают нормальным функциям Грина, усредненным по конфигурациям немагнитных примесей

Рассмотрим плоский контакт между ферромагнитным металлом (FM), занимающим область $-\infty < z < 0$, и сверхпроводником (S), занимающим область $0 < z < \infty$. Методами диаграммной техники (см. [34] и рис. 2) можно показать, что при наличии обменного поля и немагнитного рассеяния на примесях ядро $H_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ уравнения (4) является решением другого интегрального уравнения

$$H_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = K_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) + \int \frac{K_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_1, \omega) H_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}', \omega) d^3 r_1}{2\pi N(z_1) \tau(z_1)}. \quad (6)$$

Здесь $N(z)$ и $\tau^{-1}(z)$ – соответственно плотность состояний на уровне Ферми и скорость рассеяния на примесях скачком меняющие свои значения при переходе через поверхность раздела $z = 0$, а ядро $K_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ уравнения (6) определяется выражением

$$K_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = G_{\alpha\alpha}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) G_{\beta\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', -\omega) \quad (7)$$

где $G_{\alpha\alpha}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ – усредненная по примесям функция Грина электронов проводимости в нормальной фазе. Уравнение (6) в отличие от аналогичного интегрального уравнения нашей предыдущей работы [13] является трехмерным и вкупе с выражением (4) позволяет учитывать пространственные изменения параметра порядка не только поперек слоев FM и S (вдоль оси z), но и в плоскости x – y границы раздела FM/S. Этот факт позволяет нам рассчитывать на получение в дальнейшем более широкого, чем прежде [11–13], класса решений для возможных состояний FM/S-системы и, следовательно, новых вариантов поведения T_c .

Далее для удобства введем аномальную функцию Горькова $F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \omega)$, связанную с коррелятором $H_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ соотношением

$$F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{\pi N(z)} \int H_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \Delta(\mathbf{r}') d^3 r'. \quad (8)$$

Тогда в терминах функций $F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \omega)$ уравнения (4), (6) переписутся в виде

$$\Delta(\mathbf{r}) = \lambda(z) \pi T \sum_{\alpha \neq \beta} \sum_{\omega} F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \omega), \quad (9)$$

$$F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{\pi N(z)} \int K_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \left[\Delta(\mathbf{r}') + \frac{1}{2\tau(z')} F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}', \omega) \right] d^3 r', \quad (10)$$

где $\lambda(z) = N(z)V(z)$ – безразмерный параметр межэлектронного взаимодействия. В случае бесконечного, однородного ферромагнитного сверхпроводника, в силу трансляционной инвариантности системы, ядро $K_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = K_{\alpha\beta}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', \omega)$ зависит только от модуля разности радиус-векторов $R = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$. Эта зависимость имеет ярко выраженный 3D осциллирующий (с периодом $2\pi a_f$) характер. В частности, для беспримесного случая с $\tau^{-1} = 0$ с помощью (5) и явного вида гриновских функций $G_{\alpha\alpha}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ легко получить

$$K_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \left(\frac{m}{2\pi R} \right)^2 \exp \left(- \frac{2|\omega| + 2iI g \operatorname{sgn} \omega}{v_f} R \right), \quad (11)$$

где m – масса электрона, а $g_{\downarrow} = -g_{\uparrow} = 1$. В этом случае уравнение (10) имеет два решения. Первое решение типа БКШ с $\Delta(\mathbf{r}) = \text{const.}$ и $F_{a\beta}(\mathbf{r}, \omega)$, не зависящей от $\mathbf{r}$, было найдено Горьковым и Русиновым [35]. Второе решение это состояние ЛОФФ с 3D осцилляциями, которые в простейшем случае имеют вид $F_{a\beta}(\mathbf{r}, \omega) \propto \Delta(\mathbf{r}) \propto \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r})$, где $k \approx 2l/v_f$ [22,23]. Конкретный вид 3D решетки ЛОФФ (полоса, куб, гексагональная структура и т.д.) для нахождения T_c не важен, так как уравнения (9), (10) линейны по $\Delta(\mathbf{r})$.

В контакте FM/S мы будем иметь четыре разных ядра $K_{a\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$. Из них два ядра с $\mathbf{r}, \mathbf{r}'$, принадлежащими одной и той же стороне контакта; одно осциллирующее ядро с $I \neq 0$, которое в глубине FM-области имеет вид (11), другое – монотонно убывающее и работающее в глубине S-области, получается из (11), если положить $I = 0$. Два других ядра с $\mathbf{r}$ и $\mathbf{r}'$, принадлежащими разным сторонам контакта FM/S, должны сочетать и осциллирующее, и знако-постоянное поведение, создавая переходную область FM/S.

Ввиду плоской геометрии задачи о контакте FM/S, в дальнейшем будем разделять переменные $\mathbf{p} = (x, y)$ и z , представляя $\mathbf{r} = (\mathbf{p}, z)$. Важно отметить, что наличие обменного поля I , которое скачком обращается в нуль при переходе из FM-слоя в S-слой, нарушает трансляционную симметрию вблизи границы FM/S не только по оси z , но и в плоскости $x-y$. В частности, ядро $K_{a\beta}(\mathbf{p}, \mathbf{p}', z, z', \omega) \neq K_{a\beta}(\mathbf{p}-\mathbf{p}', z, z', \omega)$, если $\mathbf{p}$ и $\mathbf{p}'$ принадлежат разным берегам контакта FM/S. Дело в том, что такие ядра примешивают друг к другу периодические по $\mathbf{p}$ состояния ЛОФФ в FM-слое и не зависящие от $\mathbf{p}$ состояния БКШ в S-слое. Например, если $\mathbf{p}$ изменяется внутри FM-слоя ($z < 0$), а $\mathbf{p}'$ – внутри S-слоя ($z' > 0$), данное ядро будет дополнительно осциллировать по $\mathbf{p}$ с периодом порядка $a_f = v_f/2I$, оставаясь монотонной функцией $(\mathbf{p}-\mathbf{p}')$. Равенство $K_{a\beta}(\mathbf{p}, \mathbf{p}', z, z', \omega) = K_{a\beta}(\mathbf{p}-\mathbf{p}', z, z', \omega)$ имеет место лишь тогда, когда $\mathbf{p}$ и $\mathbf{p}'$ принадлежат одному и тому же слою (FM или S). На это обстоятельство мы указываем *впервые*; во всех предыдущих теориях эффекта близости [7-13] *априори* считалось, что система FM/S трансляционно-инвариантна в плоскости $x-y$.

Далее из-за линейности задачи по $F_{a\beta}(\mathbf{r}, \omega)$ и $\Delta(\mathbf{r})$, которые выражаются друг через друга, для решения уравнения (6) можно использовать разложение Фурье и в простейшем случае достаточно рассмотреть решения с одной гармоникой Фурье [36]. Поэтому будем искать решения для $\Delta(\mathbf{p}, z)$ в областях FM ($-\infty < z < 0$) и S ($0 < z < \infty$) в виде блоховских волн:

$$\Delta_f(\mathbf{p}, z) = \Delta_f(\mathbf{q}_f, z)e^{i\mathbf{q}_f\mathbf{p}}; \Delta_s(\mathbf{p}, z) = \Delta_s(\mathbf{q}_s, z)e^{i\mathbf{q}_s\mathbf{p}}, \quad (12)$$

где 2D-компоненты импульса пар $\mathbf{q}_f$ и $\mathbf{q}_s$ описывают возможные осцилляции параметра порядка в плоскости $x-y$ в слоях FM и S, соответственно. Аналогичные зависимости предполагаются и для функций $F_{a\beta}(\mathbf{p}, z, \omega)$.

Решения (12) обладают достаточной общностью. В частности, они включают ранее изученный случай $q_f = q_s = 0$, соответствующий сохранению продольного импульса пар при переходе через FM/S-границу [7-13]. Кроме того, они допускают ряд новых возможностей, наиболее яркая из которых $q_f = g \neq 0$, $q_s = 0$ отвечает комбинации спаривания БКШ в S-слое с 3D спариванием FFLO в слое FM.

Пользуясь представлением (12), уравнения (9),(10) удобно переписать в терминах двумерных фурье-образов соответствующих функций, т.е.

$$\Delta(\mathbf{q}, z) = \lambda(z) \pi T \sum_{\alpha \neq \beta} \sum_{\omega} F_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, z, \omega), \quad (13)$$

$$F_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, z, \omega) = \frac{1}{\pi N(z)} \int_{-\infty}^{\infty} K_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \mathbf{q}', z, z', \omega) \left[\Delta(\mathbf{q}', z') + \frac{1}{2\tau(z')} F_{\alpha\beta}(\mathbf{q}', z', \omega) \right] dz', \quad (14)$$

где двумерные импульсы пар в плоскости контакта $\mathbf{q}$ и $\mathbf{q}'$ являются ступенчатыми функциями z и z' , соответственно. В частности, $\mathbf{q}(z) = \mathbf{q}_s \theta(z) + \mathbf{q}_f \theta(-z)$, где $\theta(z)$ – ступенчатая функция Хевисайда, аналогично выглядит и зависимость $\mathbf{q}'(z')$. Ядро $K_{\alpha\beta}$ уравнения (10), ввиду отсутствия трансляционной инвариантности, выражается через сумму по $\mathbf{p}$ и $\mathbf{p}'$ от произведения (7) двумерных фурье-образов функций Грина $G_{\alpha\alpha}$ и $G_{\beta\beta}$, взятых раздельно по переменным $\mathbf{p}$ и $\mathbf{p}'$, т.е.

$$K_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \mathbf{q}', z, z', \omega) = \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{p}'} G_{\alpha\alpha}(\mathbf{p}, \mathbf{p}', z, z', \omega) G_{\beta\beta}(\mathbf{q} - \mathbf{p}, \mathbf{q}' - \mathbf{p}', z, z', -\omega), \quad (15)$$

Отметим, что в выражениях (12)-(15) уже заложена возможность спаривания по механизму ЛОФФ с отличным от нуля трехмерным импульсом пары $\mathbf{k}$, проекцией которого на плоскость x - y является именно вектор $\mathbf{q}$ ($\mathbf{q} = \mathbf{k}_{\perp}$). Частный случай $\mathbf{k} = \mathbf{q} = \mathbf{0}$ отвечает механизму спаривания БКШ. Поскольку спаривание происходит из изознергетических состояний вблизи энергии Ферми естественно ожидать, что двумерные (2D) проекции $\mathbf{p}$ соответствующих 3D импульсов будут близки к фермиевским p_f и p_s в каждом из металлов, находящихся в контакте. Величина же 2D импульса пары $\mathbf{q}$, как мы увидим ниже, также будет иметь свое значение q_f или q_s ($\mathbf{q}_f = \mathbf{q}_s + \mathbf{g}$), зависящее от условий спаривания в каждом из металлов FM или S. В частности, жесткость волновой функции БКШ, как будет показано в разд. 3 требует равенства $q_s = 0$, то есть неосциллирующего поведения парной амплитуды в S-слое и поэтому $\mathbf{q}_f = \mathbf{g}$ (см. разд. 3).

Интегральное уравнение (14) содержит полную информацию как о параметрах электронной структуры и кинетических характеристиках металлов, находящихся в контакте, так и о скачкообразном изменении их величины при переходе через резкую границу раздела FM/S. Однако в

случае контакта достаточно грязных металлов FM и S существенно удобнее свести проблему решения интегрального уравнения (14) для коррелятора $F_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, z, \omega)$ к решению эквивалентной дифференциальной краевой задачи.

Необходимо отметить, что понятие грязного предела, которое для сверхпроводника традиционно отвечает малости длины свободного пробега $l_s = v_s \tau_s$ по сравнению с температурной длиной когерентности $\xi_{ST} = v_s / 2\pi T$, существенно модифицируется для ферромагнитного металла. Дело в том, что в последнем кроме l_f и ξ_{JT} имеется еще и третий характерный масштаб - длина спиновой жесткости $a_f = v_f / 2I$, ответственная за волновой тип распространения квазичастиц. Поэтому в примесном ферромагнитном металле при l_f , $a_f < \xi_{JT}$ необходимо отдельно рассматривать случаи $l_f < a_f$ ($2I\tau_f < 1$) и $l_f > a_f$ ($2I\tau_f > 1$).

В случае контакта грязных металлов FM и S, когда длина свободного пробега $l_j = v_j \tau_j$ ($j = f, s$) является наименьшей среди характеристических длин задачи, проблема решения интегрального уравнения (14) для коррелятора $F_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, z, \omega)$ сводится к решению эквивалентной дифференциальной краевой задачи. Действительно, обобщая наш подход [13] на трехмерный случай и решая задачу с потенциальным барьером на границе FM/S для коррелятора $K_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \mathbf{q}', z, z', \omega)$, определенного в (15), можно показать, что функция Горькова $F_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, z, \omega)$ является решением краевой задачи, состоящей из уравнений Узалея для металлов FM и S и соответствующих граничных условий. Линеаризованные в пределе $T \rightarrow T_c$ уравнения Узалея для $F_{\alpha\beta}(\mathbf{p}, z, \omega)$ после обратного 2D преобразования Фурье примут вид

$$\left[|\omega| + iI(z)g_{\alpha\beta} \operatorname{sgn} \omega - \frac{1}{2} D_{\alpha\beta}(z) \left(\nabla_{\mathbf{p}}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \right] F_{\alpha\beta}(\mathbf{p}, z, \omega) = \Delta(\mathbf{p}, z), \quad (16)$$

а граничные условия, связывающие поток функции Горькова $F_{\alpha\beta}(\mathbf{p}, z, \omega)$ с ее скачком на поверхности раздела FM/S, имеют вид

$$\begin{aligned} \frac{4D_{s\alpha\beta}}{\sigma_s v_s} \frac{\partial F_{\alpha\beta}(\mathbf{p}, z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z=0} &= \frac{4D_{f\alpha\beta}}{\sigma_f v_f} \frac{\partial F_{\alpha\beta}(\mathbf{p}, z, \omega) e^{-ig\mathbf{p}}}{\partial z} \Big|_{z=-0} = \\ &= F_{\alpha\beta}(\mathbf{p}, +0, \omega) - F_{\alpha\beta}(\mathbf{p}, -0, \omega) e^{-ig\mathbf{p}} \end{aligned} \quad (17)$$

В (16), (17) зависимость всех величин от z имеет ступенчатый характер, т.е. $I(z > 0) = 0$, $I(z < 0) = I$; $\sigma(z > 0) = \sigma_s$, $\sigma(z < 0) = \sigma_f$; $v(z > 0) = v_s$, $v(z < 0) = v_f$; $D_{\alpha\beta}(z > 0) = D_{s\alpha\beta}$, $D_{\alpha\beta}(z < 0) = D_{f\alpha\beta}$. Как показано ниже в разд. 3, величина 2D вектора обратной решетки поверхностных состояний ЛОФФ $g = |\mathbf{g}| \sim (I/D_f)^{1/2}$ находится из условия минимума свободной энергии системы. Параметры прозрачности контакта σ_s и σ_f со стороны металлов S и

FM, соответственно, связаны соотношением детального баланса $\sigma_s v_s N_s = \sigma_f v_f N_f$ [11-13], где

$$\sigma_j = \langle \sigma v_{jz} / (1 - \sigma) v_j \rangle. \quad (18)$$

Угловые скобки в (18) обозначают усреднение по углу между направлением скорости электрона и нормалью к границе раздела. В отличие от квантово-механического коэффициента прозрачности σ ($0 < \sigma < 1$) потенциального барьера на FM/S-границе величины σ_s и σ_f могут принимать, вообще говоря, любые значения от 0 до ∞ . Коэффициенты диффузии $D_{af}(z) = D_{jaf}$ определяются выражением ($j = f, s$):

$$D_{af}(z) = \frac{D(z)}{1 + 2iI(z)\tau(z)g_{af}\text{sign}\omega}; \quad D(z) = D_j = \frac{v_j l_j}{3}. \quad (19)$$

Комплексный знаменатель в выражении (19) для коэффициента диффузии описывает конкуренцию между диффузионным и волновым типами движения квазичастиц в ферромагнетике [37-39]. В случае, когда ферромагнитный металл менее грязный, т.е., $a_f \ll l_f \ll \xi_{JT}$ ($2l_f \ll 1$) требуется более тонкое совместное решение уравнений (14), (15), которое приводит к новому полюсу парной амплитуды, учитывающему преимущественно волновой тип движения квазичастиц в FM-слое. Соответствующий результат формально заключается в иной, нежели (19), перенормировке коэффициента диффузии; он приведен ниже в разд. 3.

Из граничных условий (17) следует, что поток пар БКШ из S-слоя в FM-слой равен обратному потоку пар ЛОФФ, отдающих избыточный 2D импульс $\mathbf{g}$ решетке и превращающихся в пары БКШ (первое равенство). Причем оба потока определяются перепадом плотности таких пар на границе S/FM (второе равенство). Умножив обе части (17) на $\exp(i\mathbf{g}\mathbf{r})$ получим второе граничное условие, из которого видно, что поток пар ЛОФФ через интерфейс FM/S, в свою очередь, равен обратному потоку пар БКШ, приобретающих недостающий импульс $\mathbf{g}$ у решетки и превращающихся в пары ЛОФФ (см. рис. 1). Оба этих потока пропорциональны скачку соответствующей парной функции: $F_{af}(\mathbf{p}, +0, \omega) \exp(i\mathbf{g}\mathbf{r}) - F_{af}(\mathbf{p}, -0, \omega)$.

В прежних теориях эффекта близости [6,7,10,18,24,40,41] для структур FM/S использовались граничные условия Куприянова-Лукичева (КЛ) [42], которые получаются из (17) при $I = g = 0$. Условия КЛ [42], справедливые для контакта NM/S в грязном пределе (NM – нормальный неферромагнитный металл), неадекватны 3D природе спаривания ЛОФФ в FM-слоях и допускают лишь 1D состояния с перебросом импульса пар только по нормали к границе раздела FM/S. В силу этого важный класс 3D состояний ЛОФФ с перебросом импульса пар вдоль поверхности FM/S исключается из рассмотрения, что

является ошибочным, несмотря на попытку в комментарии [43] к обзору [44] оправдать применимость граничных условий КЛ к системе FM/S (подробнее см. ответ [45] на комментарий [43]). Таким образом, истинная теория эффекта близости в структурах FM/S должна быть трехмерной. К сожалению, не все это понимают и продолжают публиковать частные результаты, следующие из 1D теории эффекта близости. Несомненно, эти результаты нужно пересмотреть в свете 3D граничных условий типа (17) и откорректировать должным образом. Отметим, например, еще одну 1D версию вывода граничных условий [46] для структур FM/S. Совершенно ясно, что приложение таких граничных условий к вычислению критической температуры приведет к множественным осцилляциям зависимости $T_c(d_f)$, характерным для квазиодномерных систем FM/S (см. обзор [44]). Именно это и подтвердили расчеты тех же авторов [47], основанные на граничных условиях [46]. В то же время реальные структуры FM/S – трехмерны, а экспериментальные зависимости $T_c(d_f)$ обладают немонотонностью иного типа, например, с ярко выраженным минимумом или единичным всплеском [44].

Система уравнений (16),(17) допускает не только 1D-, но и 3D-решения для парной амплитуды в отличие от всех прежних подходов [6,7,10,11-13,18,24,40,41,43,46,47]. Как будет показано ниже, именно конкуренция ранее известных 1D- и новых 3D- состояний ЛОФФ кардинально изменяет зависимость $T_c(d_f)$ по сравнению со старыми теориями, существенно приближая ее к экспериментально наблюдаемому поведению.

3. Критическая температура контакта FM/S

Вычислим температуру сверхпроводящего перехода плоского контакта FM/S между ферромагнитным металлом, занимающим область $-d_f < z < 0$, и сверхпроводником, занимающим область $0 < z < d_s$. Учитывая свойства симметрии функции Горькова $F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \omega, I) = F_{\beta\alpha}^*(\mathbf{r}, \omega, I) = F_{\beta\alpha}(\mathbf{r}, -\omega, I) = F_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, -\omega, -I) = F_{\beta\alpha}(\mathbf{r}, \omega, -I)$ и, переходя к положительным частотам ω , перепишем, опуская для удобства спиновые индексы, краевую задачу (9),(16),(17) отдельно для слоев S и FM. Для S-слоя получаем

$$\Delta_s(\mathbf{p}, z) = 2\lambda_s \pi T \operatorname{Re} \sum_{\omega > 0} F_s(\mathbf{p}, z, \omega) \quad (20)$$

$$\left[\omega - \frac{D_s}{2} (\nabla_{\mathbf{p}}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2}) \right] F_s(\mathbf{p}, z, \omega) = \Delta_s(\mathbf{p}, z), \quad 0 < z < d_s \quad (21)$$

аналогично для FM-слоя имеем

$$\Delta_f(\mathbf{p}, z) = 2\lambda_f \pi T \operatorname{Re} \sum_{\omega > 0} F_f(\mathbf{p}, z, \omega) \quad (22)$$

$$\left[\omega + iI - \frac{D_f(I)}{2} (\nabla_{\mathbf{p}}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2}) \right] F_f(\mathbf{p}, z, \omega) = \Delta_f(\mathbf{p}, z), \quad -d_f < z < 0, \quad (23)$$

Здесь $\lambda_s = N_s V_s$ и $\lambda_f = N_f V_f$ – безразмерные параметры межэлектронных взаимодействий в S и FM слоях, а комплексный коэффициент диффузии дается выражением $D_f(I) \approx D_f/(1 + 2iI\tau_f)$ при $2I\tau_f \ll 1$. Соответствующие уравнения (21) и (23) граничные условия на поверхности раздела $z = 0$ имеют вид

$$\begin{aligned} D_s \frac{\partial F_s(\mathbf{p}, z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z=+0} &= \frac{\sigma_s v_s}{4} [F_s(\mathbf{p}, +0, \omega) - F_f(\mathbf{p}, -0, \omega) e^{-i\mathbf{g}\mathbf{p}}] \\ D_f(I) \frac{\partial F_f(\mathbf{p}, z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z=-0} &= \frac{\sigma_f v_f}{4} [F_s(\mathbf{p}, +0, \omega) e^{i\mathbf{g}\mathbf{p}} - F_f(\mathbf{p}, -0, \omega)] \end{aligned} \quad (24)$$

Решая краевую задачу (21),(23),(24) для функций Узаделя совместно с уравнениями самосогласования Горькова (20),(22) можно вычислить температуру сверхпроводящего перехода FM/S-контакта как функцию прозрачности границы раздела σ_s и σ_f , толщины слоев d_s и d_f , параметра $2I\tau_f$ и т.д.

Как показано нами ранее [13], различие в константах межэлектронного взаимодействия ($\lambda_f < \lambda_s$) обуславливает понижение T_c лишь до толщин d_f порядка межатомных расстояний. Сильное распаривающее действие обменного поля I ($I \ll \pi T_{cs}$, где T_{cs} – критическая температура изолированного S-слоя) является основным механизмом разрушения сверхпроводимости в FM/S-системах. Пренебрегая для простоты межэлектронным взаимодействием в FM-слое $\lambda_f = 0$ ($\Delta_f = 0$), будем искать решения уравнений (20)-(24) в виде, исключающем поток электронов через внешние границы контакта. В одномодовом приближении [7,13], которое справедливо при $d_s > \xi_s$, где $\xi_s = (D_s/2\pi T_{cs})^{1/2}$ – длина когерентности грязного сверхпроводника, эти решения имеют вид

$$\begin{aligned} F_s(\mathbf{p}, z, \omega) &= \frac{\Delta_s(\mathbf{p}, z)}{[\omega + D_s(k_s^2 + q_s^2)/2]} = \\ &= \frac{A(\mathbf{q}_s) \exp(i\mathbf{q}_s \mathbf{p}) \cos[k_s(z - d_s)]}{[\omega + D_s(k_s^2 + q_s^2)/2] \cos(k_s d_s)}, \quad 0 < z < d_s \\ F_f(\mathbf{p}, z, \omega) &= \frac{B(\mathbf{q}_f) \exp(i\mathbf{q}_f \mathbf{p}) \cos[k_f(z + d_f)]}{\cos(k_f d_f)}, \quad -d_f < z < 0 \end{aligned} \quad (25)$$

где $A(\mathbf{q}_s)$ и $B(\mathbf{q}_f)$ – не зависят от z и ω , а k_s и k_f – не зависящие от частоты (при $\omega \ll I$) компоненты импульса пар, описывающие пространственные изменения парной амплитуды $F(\mathbf{r}, \omega)$ поперек слоев (вдоль оси z).

В результате для приведенной температуры сверхпроводящего перехода $t = T_c/T_{cs}$ двуслойного FM/S-контакта получается обычное уравнение типа Абрикосова-Горькова

$$\ln t = \Psi\left(\frac{1}{2}\right) - \operatorname{Re} \Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{D_s(k_s^2 + q_s^2)}{4\pi T_{cs} t}\right), \quad (26)$$

где T_{cs} – критическая температура изолированного S-слоя, $\Psi(x)$ – дигамма-функция, а параметр распаривания $D_s k_s^2$ является решением другого трансцендентного уравнения

$$D_s k_s \operatorname{tg}(k_s d_s) = \frac{\sigma_s v_s}{4 - \frac{\sigma_f v_f}{D_f(I) k_f} \operatorname{ctg}(k_f d_f)}. \quad (27)$$

Здесь волновое число k_f при $2I\tau_f \ll 1$ и $I \ll \pi T_{cs}$, определяется выражением

$$k_f^2 + q_f^2 = -\frac{2iI}{D_f(I)} = \frac{-2iI(1 + 2iI\tau_f)}{D_f}. \quad (28)$$

Из условия минимума свободной энергии (максимума T_c) следует, что q_s строго равно нулю. Это неудивительно, так как при БКШ-типе спаривания с нулевым суммарным импульсом в S-слое парная амплитуда $F_s(\mathbf{r}, \omega)$ должна иметь знакопостоянный характер. В то же время в FM-слое имеет место спаривание по механизму ЛОФФ с отличным от нуля трехмерным когерентным импульсом пар $\mathbf{k} = (\mathbf{q}_f, k_f)$ и осциллирующей парной амплитудой $F_f(\mathbf{r}, \omega)$. Из уравнений (26)-(28) следует, что величина 2D-компоненты импульса пар ЛОФФ q_f остающаяся произвольной, должна находиться путем оптимизации, т.е. из условия максимума T_c . Реализации 1D состояний будет отвечать $q_f = 0$, а 3D состояниям ЛОФФ будет соответствовать $q_f = g \sim (I/D_f)^{1/2}$.

В пределе относительно чистого ферромагнитного металла с $2I\tau_f \ll 1$ уточненное по сравнению с прежними работами [11-13] совместное решение уравнений (14),(15) приводит к новому характеристическому уравнению для q_f и k_f , отличному от (28), а именно:

$$k = \sqrt{k_f^2 + q_f^2} = \frac{2I}{v_f} \left(1 - \frac{i}{2I\tau_f}\right). \quad (29)$$

Для чистого ферромагнитного металла ($2I\tau_f \rightarrow \infty$) мы получаем из (29) непосредственно решение ЛОФФ [22,23], соответствующее неоднородному сверхпроводящему состоянию с периодом обратной решетки пар ЛОФФ $g_0 = 2/a_f$. Для примесного FM-слоя выражение (29) приводит к формальной замене в уравнениях (23),(24),(27),(28) эффективного коэффициента диффузии $D_f(I)$ на выражение

$$D_f(I) = \frac{3D_f}{2(1 + iI\tau_f)} . \quad (30)$$

Это позволяет провести качественный анализ 1D и 3D решений для парной амплитуды FM/S-структур и для случая, когда ферромагнитный металл не слишком грязный ($2I\tau_f \gg 1$).

Результаты численного анализа зависимостей $T_c(d_f)$ для различных значений параметров σ_s , $2I\tau_f$, $n_{sf} = N_s v_s / N_f v_f$, l_s / ξ_s и d_s приведены в нижних частях рис. 3а-3д. Сплошные жирные линии изображают оптимизированное с учетом конкуренции 1D и 3D состояний ЛОФФ поведение $T_c(d_f)$. Тонкие штриховые линии соответствуют нашим прежним результатам [11-13], учитывающим лишь 1D состояния ЛОФФ. На верхних частях рисунков показана зависимость двумерного волнового вектора q_f от d_f . Области реализации 1D-ЛОФФ-фазы ($q_f = 0$) окрашены в светло-серый тон, 3D-ЛОФФ-фаза ($q_f \neq 0$) имеет белый фон.

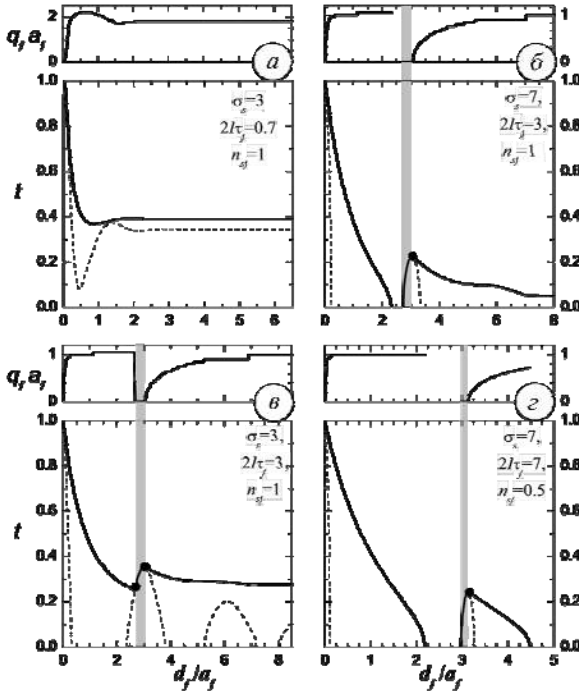


Рис. 3. Температура сверхпроводящего перехода $t = T/T_{cs}$ и двумерный волновой вектор ($q_f a_f$) парной амплитуды как функции приведенной толщины FM-слоя d_f/a_f для двухслойных FM/S-контактов при $l_s = 0.25 \xi_{s0}$ и $d_s = 0.625 \xi_{s0}$ для различных значений параметров σ_s , $2I\tau_f$ и $n_{sf} = N_s v_s / N_f v_f$. Рисунок взят из работы [44]

Природу 1D-осцилляций $T_c(d_f)$ легко понять в рамках нашей прежней теории [11-13] для двухслойного FM/S-контакта с $q_f = 0$ (см. рис. 4). При $2l_f > 1$ условие отсутствия потока пар ЛОФФ через внешнюю границу ферромагнетика с вакуумом фиксирует на ней пучность парной амплитуды, что приводит с ростом толщины FM-слоя к осцилляциям скачка парной амплитуды на FM/S-границе. Всякий раз, когда на FM/S-границе оказывается узел парной амплитуды ЛОФФ (рис. 4а), скачок и связанный с ним поток куперовских пар из S-слоя в FM-слой будут принимать максимальное значение. Поскольку, проникая в FM-слой, куперовские пары тут же разрушаются сильным обменным полем, этим значениям толщины FM-слоя будут отвечать минимумы $T_c(d_f)$ или даже исчезновение сверхпроводимости. Если же на FM/S-границе оказывается пучность парной амплитуды ЛОФФ (рис. 4б), то поток куперовских пар через S/FM-границу становится минимальным. При этих толщинах FM-слоя будут возникать максимумы $T_c(d_f)$. Когда толщина ферромагнитного слоя становится больше глубины проникновения спаренных квазичастиц, квантовая связь между его границами разрушается, поток пар через S/FM-границу становится постоянным и функция $T_c(d_f)$ выходит на плато (см. рис. 4в).

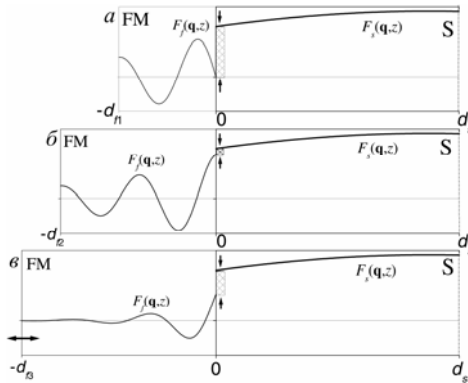


Рис. 4. Схематическое изображение механизма 1D-осцилляций T_c контакта FM/S в зависимости от толщины FM-слоя d_f . Сплошными кривыми показано изменение парной амплитуды $F(q,z)$ вдоль оси z . Вертикальные стрелки показывают величину скачка парной амплитуды на границе FM/S. Рисунок взят из работы [44]

По мере повышения концентрации немагнитных примесей в FM-слоях волновой тип движения квазичастиц, присущий чистому ферромагнетиту с $2l_f > 1$, будет сменяться при $2l_f < 1$ ($l_f < a_f$) диффузионным. Импульс пар k_f станет при этом плохим квантовым числом, а осцилляции парной амплитуды ЛОФФ, приобретая большое затухание ($\text{Im } k_f \sim \text{Re } k_f$), перестанут

обеспечивать когерентную связь между двумя границами FM-слоя (см. снова рис. 4в). В этом случае зависимость $T_c(d_f)$ будет принимать сглаженный монотонный характер, наблюдавшийся в экспериментах [1,2,18].

Из граничных условий (24) следует, что левая часть выражения (27), определяющая параметр распаривания $D_s k_s^2$ в уравнении (26) для T_c , пропорциональна потоку куперовских пар из S-слоя в FM-слой. При этом резонансный знаменатель правой части (27), обратно пропорциональный скачку парной амплитуды на FM/S-границе, периодически изменяет величину этого потока пар с увеличением толщины FM-слоя за счет функции $\text{ctg}(k_f d_f)$. Однако в отличие от ранее полученных нами [11-13] 1D решений с $q_f = 0$, появление 3D решений с вещественными $q_f \neq 0$ сильно уменьшает $\text{Re } k_f$ согласно уравнению (28). Это приводит к увеличению периода осцилляций парной амплитуды $F(\mathbf{r}, \omega)$ вдоль оси z , который может стать больше глубины проникновения пар в FM-слой ($\text{Im } k_f > \text{Re } k_f$) и когерентная связь между двумя границами FM-слоя будет разрушаться. В результате этого наблюдаемость осцилляций $T_c(d_f)$ (кроме быть может первого пика) сильно уменьшится.

Из рис. 3а-3д следует, что конкуренция 1D и 3D состояний ЛОФФ оказывает определяющее влияние на самые различные варианты поведения функции $T_c(d_f)$. Показанный на рис. 3а быстрый спад с плавным выходом на плато, который наблюдался в бислоях Gd/Nb [2] и Fe/Pb [16], связан с чисто 3D поведением парной амплитуды. Одномерные решения здесь имеют более низкие значения T_c и не реализуются вообще. Периодически возвратная сверхпроводимость, предсказываемая нашей старой 1D теорией [11-13] и показанная на рис. 3с тонкими штриховыми линиями, практически полностью перекрывается монотонно падающей 3D кривой $T_c(d_f)$. Единственный всплеск зависимости $T_c(d_f)$, имевший место в эксперименте с трислоями Fe/Nb/Fe [8], обязан каскаду чередующихся фазовых переходов 3D-1D-3D. Приведенная на рис. 3с фазовая диаграмма обладает яркой особенностью в виде тройных точек Лифшица [48] (пересечения сплошной и штриховой линий), показанных черными кружочками. В них сходятся сразу три фазы: две сверхпроводящие (соразмерная 1D с $q_f = 0$ и несоразмерная 3D с $q_f \neq 0$) и одна нормальная. При подходе к точке Лифшица период q_f^{-1} двумерной модуляции парной амплитуды $F(\mathbf{r}, \omega)$ в плоскости FM/S-границы неограниченно возрастает. На двух других рисунках 3б и 3д воспроизведены различные варианты возвратной сверхпроводимости, реализация которых в общем случае 3D состояний ЛОФФ ограничена значительно более узким интервалом параметров теории по сравнению с 1D случаем [11-13]. Тем не менее, возвратная сверхпроводимость, аналогичная изображенной на рис. 3б, недавно была обнаружена в трислоях Fe/V/Fe [21].

Таким образом, даже за внешне простым, как на рис. 3а и наблюдавшемся во многих экспериментах, поведением $T_c(d_f)$ может стоять нетривиальная физика FM/S-систем, заключающаяся в комбинированном (БКШ плюс ЛОФФ)

характере сверхпроводимости и конкуренции 1D и 3D состояний ЛОФФ в FM-слоях. Состояния 1D-ЛОФФ с ярко выраженными осцилляциями $T_c(d_f)$, показанные на рис. 3а-3д, тонкими штриховыми линиями, в чистом виде могли бы, по-видимому, реализовываться лишь в FM/S-структурах, где FM-слои являются квазиодномерными ферромагнетиками с проводящими нитями, ориентированными перпендикулярно к границе раздела FM/S. Другая возможность реализации только состояний 1D ЛОФФ состоит в замене FM-слоев квазиодномерными ферромагнитными мостиками (вискерами). В этих случаях пространственными изменениями парной амплитуды вдоль FM/S-границ можно пренебречь.

4. Конкуренция 0- и π -фазных магнетизма и сверхпроводимости в сверхрешетках FM/S

Рассмотрим сверхрешетку FM/S, образованную чередованием вдоль оси z FM-слоев толщиной d_f и S-слоев толщиной d_s . Для изучения взаимной подстройки конкурирующих типов спаривания БКШ и ЛОФФ, с одной стороны, и магнетизма, с другой стороны, элементарную ячейку сверхрешетки FM/S удобно выбрать в виде /S/FM/S/FM/. Такой выбор элементарной ячейки позволяет учитывать возможную смену фаз и сверхпроводящего, и магнитного параметров порядка при переходе через FM- или S-слои соответственно. Краевая задача для функции Горькова $F(\mathbf{r}, z, \omega, I)$ будет описываться дифференциальными уравнениями (21) и (23) соответственно в S-слоях, занимающих области $-(d_s + d_f) < z < -d_f$ и $0 < z < d_s$, и в FM-слоях, расположенных в областях $-d_f < z < 0$ и $d_s < z < d_s + d_f$. Граничные условия на центральной поверхности раздела $z = 0$ элементарной ячейки имеют вид (24). На других границах элементарной ячейки: $z = d_s$; $z = -d_f$; $z = -(d_s + d_f)$ и $z = d_s + d_f$ будут справедливы соотношения, аналогичные (24), дополненные условиями периодичности

$$F(\mathbf{r}, z + L, \omega, I) = e^{i\varphi} F(\mathbf{r}, z, \omega, I e^{i\chi}), \quad (31)$$

где $L = d_s + d_f$ - период сверхрешетки, а φ и χ фазы сверхпроводящего Δ и магнитного I параметров порядка соответственно. Условия периодичности (31) позволяют принять во внимание два важных эффекта. Во-первых, они учитывают конкуренцию между 0-фазным и π -фазным типами сверхпроводимости, которая имела место и в прежних теориях эффекта близости [6,7,11-13,32,33]. Во-вторых, они включают косвенное взаимодействие локализованных моментов соседних FM-слоев через сверхпроводящие прослойки S, отражающее парамагнитный эффект результирующего обменного поля. На этом втором моменте необходимо остановиться особо. Дело в том, что в работе Кочелаева, Тагирова и Хусаинова [49] было показано, что косвенный обмен РККИ в сверхпроводнике приобретает дальнедействующий вклад антиферромагнитного знака. Радиус действия усредненного по примесям потенциала РККИ, равный в нормальном металле длине свободного

пробега l_s , с переходом в сверхпроводящее состояние резко увеличивается до масштабов длины когерентности ξ_s . Как было показано автором [27-29], вследствие этого в сверхрешетках FI/S, образованных чередованием слоев ферромагнитного изолятора (FI) и сверхпроводника, возникало новое антиферромагнитное сверхпроводящее состояние (AFS). В AFS состоянии фазы магнитного параметра порядка в соседних FI-слоях отличаются на π , т.е. локализованные спины каждого из FI-слоев упорядочены ферромагнитно, а намагниченности соседних слоев антипараллельны. Поэтому парамагнитный эффект, наведенный в достаточно тонкой прослойке S одним FI-слоем, практически полностью компенсируется обменной поляризацией противоположного знака, индуцированной соседним FI-слоем. Можно ожидать, что подобная взаимная подстройка магнетизма и сверхпроводимости, приводящая к реализации AFS состояния будет иметь место и в сверхрешетках FM/S. Таким образом, к известной конкуренции между 0- и π -фазной сверхпроводимостью в сверхрешетках FM/S вероятно добавится конкуренция между 0- и π -фазными типами магнетизма.

Будем искать решение краевой задачи (21),(23),(24),(31) для функций Узаделя совместно с уравнениями самосогласования Горькова (20),(22) в виде линейной комбинации симметричных и антисимметричных относительно центров S- и FM-слоев функций. В частности, для центрального FM/S-контакта ячейки эти решения имеют вид

$$F_s(\mathbf{p}, z, \omega) = A(\omega) \frac{\cos[k_s(z - d_s/2)]}{\cos(k_s d_s/2)} + C(\omega) \frac{\sin[k_s(z - d_s/2)]}{\sin(k_s d_s/2)}, \quad 0 < z < d_s \quad (32)$$

$$F_f(\mathbf{p}, z) = \left\{ B \frac{\cos[k_f(z + d_f/2)]}{\cos(k_f d_f/2)} + D \frac{\sin[k_f(z + d_f/2)]}{\sin(k_f d_f/2)} \right\} \exp(i\mathbf{q}_f \mathbf{p}),$$

$$-d_f < z < 0$$

Решения для двух крайних слоев S и FM, также входящих в элементарную ячейку /S/FM/S/FM/, аналогичны (32) при учете условия периодичности (31). Минимизация свободной энергии элементарной ячейки по величинам фазы сверхпроводящего (φ) и магнитного (χ) параметров порядка приводит к возможности реализации четырех различных состояний ЛОФФ:

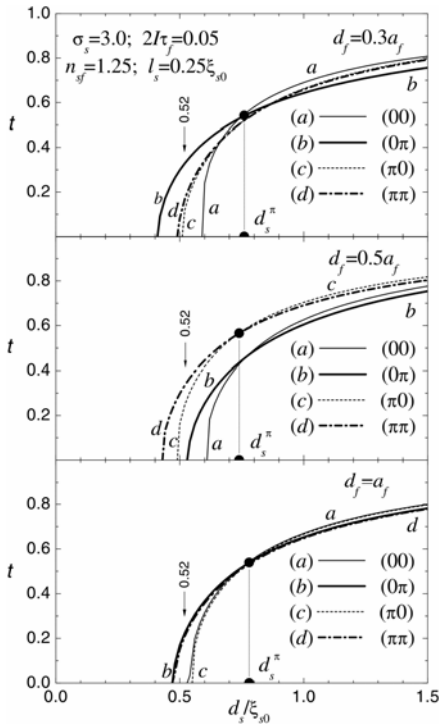
- 1) 00-фаза ($\varphi = 0, \chi = 0$); 2) π 0-фаза ($\varphi = \pi, \chi = 0$);
- 3) 0 π -фаза ($\varphi = 0, \chi = \pi$); 4) $\pi\pi$ -фаза ($\varphi = \pi, \chi = \pi$).

(33)

В состоянии 00 $C(\omega) = D = 0$, т.е. парные амплитуды (32) являются четными функциями относительно центров слоев S и FM, а в фазе π 0 $C(\omega) = B = 0$, т.е. парная амплитуда в слое FM становится нечетной. В двух

новых состояниях ЛОФФ: 0π , где $D = 0$, а $B \neq 0$, и $\pi\pi$, где, наоборот, $B = 0$, а $D \neq 0$ (в обоих случаях коэффициенты $A(\omega)$, $C(\omega) \neq 0$) парная амплитуда в S-слое четностью не обладает. Примесь синусных решений к косинусным в первом из выражений (32) отражает частичную компенсацию парамагнитного эффекта обменного поля I для S-слоев в AFS состоянии с антипараллельной ориентацией намагниченностей соседних FM-слоев.

Первые два состояния 00 и $\pi 0$ были изучены ранее в [6,7,11-13], где неявно полагалось $\chi = 0$, что соответствовало ферромагнитному сверхпроводящему состоянию (FS) сверхрешетки [27-29] с параллельной ориентацией намагниченностей всех FM-слоев. В пределе больших толщин S-слоев $d_s \gg \xi_s$ это оправдано, так как взаимная ориентация



намагниченностей соседних FM-слоев не важна, пока антиферромагнитный обмен РККИ через прослойки S экспоненциально мал [27-29]. Однако для короткопериодных сверхрешеток FM/S с толщинами d_s , близкими к критической $d_s^c \sim \xi_s$, более высокими T_c , по-видимому, будут обладать π -фазные по магнетизму 0π и $\pi\pi$ состояния ЛОФФ, а не 0-фазные — 00 и $\pi 0$, соответственно. Необходимо также отметить, что каждое из приведенных выше четырех состояний имеет два варианта реализации: 1D с $q_f = 0$ и 3D с $q_f \neq 0$. Так что сверхпроводящее состояние сверхрешетки FM/S на самом деле является результатом сложной конкуренции, вообще говоря, восьми различных состояний ЛОФФ (см. рис. 5,6).

Рис. 5. Зависимости критической температуры $t = T_c/T_{cs}$ сверхрешетки FM/S от приведенной толщины S-слоя d_s/ξ_{s0} при различных значениях толщины FM-слоя d_f . Значения основных параметров теории указаны в верхней части рисунка. Значение $d_s = 0.52 \xi_{s0}$, показанное вертикальными стрелками, соответствует кривым $t(d_f)$, приведенным на рис. 6. Рисунок взят из работы [44]

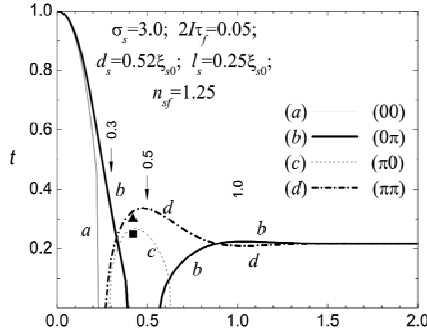


Рис. 6. Зависимость критической температуры $t = T_c/T_{cs}$ сверхрешетки FM/S ($d_s < d_s^{\pi}$) от приведенной толщины FM-слоя d/a_f при $d_s = 0.52 \xi_{s0}$ и значениях остальных параметров теории, соответствующих рис. 5. Вертикальные стрелки соответствуют толщинам d_f при которых строились диаграммы на рис. 5. Рисунок взят из работы [44]

В результате вычислений для приведенной температуры сверхпроводящего перехода $t = T_c/T_{cs}$ сверхрешетки FM/S получается то же самое уравнение (26), что и для контактов FM/S. Однако параметр распаривания $D_s k_s^2$ теперь является решением другого трансцендентного уравнения, своего для каждой из четырех фаз (33). Для фазы 00 это уравнение имеет следующий вид

$$D_s k_s^{00} \operatorname{tg}(k_s^{00} d_s / 2) = \frac{\sigma_s v_s}{4 - \frac{\sigma_s v_f n_{sf}}{D_f(I) k_f} \operatorname{ctg}(k_f d_f / 2)}. \quad (34)$$

где волновое число k_f при $2I\tau_f \ll 1$, определяется выражением (28), а при $2I\tau_f \gg 1$ уравнениями (29) и (30).

Для получения критической температуры в состоянии 0π уравнение (34) необходимо дополнить уравнением, связывающим $k_s^{0\pi}$ с k_s^{00} . Оно получается из условия нетривиальной совместности решений (32) краевой задачи для функции Горькова и имеет следующий вид

$$(k_s^{0\pi})^2 - 2 \operatorname{Re}[k_s^{00} \operatorname{tg}(k_s^{00} d_s / 2)] k_s^{0\pi} \operatorname{ctg} k_s^{0\pi} d_s = |k_s^{00} \operatorname{tg}(k_s^{00} d_s / 2)|^2 \quad (35)$$

Трансцендентное уравнение для нахождения распаривающего фактора в состоянии $\pi 0$ получается из уравнения (34) заменами: k_s^{00} на $k_s^{\pi 0}$ – в левой части и $\operatorname{ctg}(k_f d_f / 2)$ на $-\operatorname{tg}(k_f d_f / 2)$ – в правой. Уравнение, связывающее $k_s^{\pi 0}$ с $k_s^{\pi\pi}$, которое требуется для вычисления критической температуры в состоянии $\pi\pi$, получается из (35), если в нем заменить k_s^{00} на $k_s^{\pi 0}$, а $k_s^{0\pi}$ на $k_s^{\pi\pi}$.

Система уравнений (26),(28),(34),(35) позволяет исследовать зависимость приведенной критической температуры t сверхрешетки FM/S от толщины сверхпроводящих (d_s) и магнитных (d_f) прослоек при различных соотношениях параметров теории σ_s , $2l\tau_f = l_f/a_f$, n_{sf} , d_s/ξ_{s0} , d_f/a_f , l_s/ξ_{s0} . Набор оптимизированных по q_f фазовых диаграмм $t(d_s)$ для различных значений толщины FM-слоев и разумном выборе остальных параметров теории приведен на рис. 5. Как и ожидалось, в области толщин d_s , меньших порогового значения d_s^π , 0π и $\pi\pi$ AFS состояния ЛОФФ (кривые b и d) с антипараллельной ориентацией намагниченностей соседних FM-слоев являются энергетически более выгодными по сравнению с известными FS состояниями 00 и $\pi 0$ (кривые a и c). Для сверхрешеток FM/S пороговая толщина d_s^π , ниже которой реализуются π -фазные по магнетизму состояния ЛОФФ, зависит от величины других параметров теории и меняется в пределах от $0.6\xi_{s0}$ до $0.8\xi_{s0}$. Немаловажно и то, что критическая толщина сверхпроводящих слоев d_s^c , при которой T_c обращается в нуль, для AFS состояний всегда меньше, чем для FS состояний, т.е. $d_s^c(\text{AFS}) < d_s^c(\text{FS})$, где $d_s^c(\text{AFS}) = \min\{d_s^c(0\pi), d_s^c(\pi\pi)\}$, а $d_s^c(\text{FS}) = \min\{d_s^c(00), d_s^c(\pi 0)\}$. Таким образом, в диапазоне толщин S-слоев $d_s^c(\text{AFS}) < d_s < d_s^\pi$, сверхпроводимость сверхрешетки FM/S будет иметь чисто AFS природу. Из рис. 5 видно, что при данном выборе параметров теории этот диапазон оказывается достаточно широким $d_s^\pi - d_s^c(\text{AFS}) \sim 0.3\xi_{s0}$. Кроме того, для определенных толщин d_s из этого интервала разница между значениями критических температур $T_c(\text{AFS}) - T_c(\text{FS})$ может стать очень существенной. Например, при $T_c(\text{FS}) \sim 0$ эта разница больше или порядка $0.3T_{cs}$. Следует также обратить внимание на конкуренцию между самими AFS состояниями 0π и $\pi\pi$ (кривые b и d на рис. 5) при разной толщине FM-слоев d_f . Она свидетельствует о том, что природа осцилляций $T_c(d_f)$ при $d_s < d_s^\pi$ связана с каскадом фазовых переходов $0\pi - \pi\pi - 0\pi$ между новыми AFS состояниями ЛОФФ (см. рис. 6).

С увеличением толщины S-слоев выигрыш за счет частичной компенсации парамагнитного эффекта обменного поля в AFS состоянии уменьшается и при $d_s > d_s^\pi$ становится ничтожно мал. В этом случае симметричные FS решения 00 и $\pi 0$, приводящие к меньшим потокам куперовских пар через S/FM-границы раздела, обладают чуть более высокой критической температурой, чем 0π и $\pi\pi$ состояния ЛОФФ. Однако разница между $T_c(\text{AFS})$ и $T_c(\text{FS})$ в области толщин $d_s > d_s^\pi$ крайне незначительна и экспериментально вряд ли различима. Скорее всего, сверхрешетка FM/S в области толщин $d_s > d_s^\pi$ в магнитном отношении является эффективно квазидвумерной, т.е. распадается на систему S/FM/S сэндвичей, где корреляция между фазами магнитного параметра порядка в соседних FM-слоях отсутствует. В то же время 0 - или π - типа согласованность фаз сверхпроводящего параметра порядка в соседних S-слоях при этом сохраняется.

Поэтому при большой толщине S-слоев ($d_s > d_s^\pi$) немонотонное поведение $T_c(d_f)$ в сверхрешетках FM/S должно быть связано с другой цепочкой переходов 00- π 0-00, как это было показано в прежних работах [6,7,11-13].

Анализ рис. 5 показывает, что физически наиболее интересной областью толщин является интервал $d_s^c(\text{AFS}) < d_s < \max\{d_s^c(00), d_s^c(\pi 0)\}$, где критические температуры всех четырех состояний ЛОФФ наиболее сильно отличаются. Поэтому на рис. 6 приведены зависимости $t(d_f)$ при толщине S-слоя $d_s = 0.52\xi_{s0}$, соответствующей этому интервалу (указано вертикальной стрелкой на рис. 5) и тому же самому выбору параметров теории, что и на рис. 5. На рис. 6 представлены кривые, отвечающие всем четырем возможным состояниям ЛОФФ, оптимизированным с учетом конкуренции между 1D ($q_f = 0$) и 3D ($q_f \neq 0$) реализациями этих состояний. Из этого рисунка видно, что кривые b и d , отвечающие AFS состояниям 0л и $\pi\pi$, проходят значительно выше FS состояний 00 и $\pi 0$ (кривые a и c) с возвратной сверхпроводимостью. Следовательно, появление новых 0л и $\pi\pi$ AFS состояний ЛОФФ предотвращает раннее обращение T_c в нуль и существенно увеличивает площадь сверхпроводящих участков фазовых диаграмм на рис. 5,6.

Заметим, что в случае крайне грязных FM-слоев ($2I\tau_f \ll 1$), высокой прозрачности границы раздела FM/S и при относительно малой толщине S-слоев ($d_s < \xi_{s0}$) появление 3D состояний ЛОФФ слабо влияет на поведение диаграмм состояний $T_c(d_f)$. Поэтому для их качественного анализа в этой ситуации можно пользоваться более простым 1D вариантом нашей теории [11-13] при учете условия периодичности (31) и уравнения (35), связывающего распаривающие факторы FS и AFS состояний ЛОФФ.

С другой стороны, для анализа поведения функции $T_c(d_f)$ в области толщин S-слоев $d_s > d_s^\pi$, где сверхрешетка FM/S в магнитном отношении является квазидвумерной, достаточно воспользоваться более простыми 00 и $\pi 0$ решениями нашей прежней 3D теории [28,29], не учитывавшей новых AFS состояний 0л и $\pi\pi$. Дело в том, что все известные эксперименты на мультислоях FM/S проводились именно при толщинах $d_s > d_s^\pi$, где новые AFS состояния имеют чуть меньшую критическую температуру, чем состояния FS. Фазовые диаграммы $T_c(d_f)$ для сверхрешеток FM/S для $d_s > d_s^\pi$ приведены на рис. 7а-7д. В нижних частях этих рисунков тонкими штриховыми линиями и линиями точек показаны соответственно 00 и $\pi 0$ 1D-решения, полученные нами ранее (см. [11-13]). Сплошные жирные линии есть результат оптимизации зависимости $T_c(d_f)$, обремененный сложной конкуренцией 1D и 3D реализаций 00 и $\pi 0$ состояний ЛОФФ. В верхних частях показана зависимость двумерного волнового вектора q_f от d_f . Как следует из рис. 7с, при определенных значениях параметров сверхрешетки в поведении функции $T_c(d_f)$ действительно обнаруживается единичный всплеск критической температуры, обремененный каскаду фазовых переходов 3D(00)-1D($\pi 0$)-

3D($\pi 0$). Это поведение наблюдалось в экспериментах на мультислоях Gd/Nb [4,5], а также в сверхрешетках Co/Nb, Co/V [14,15]. При более низких значениях параметров σ_s и $2l_T$ амплитуда всплеска сильно уменьшается и функция $T_c(d_f)$ после монотонного спада сразу выходит на плато (рис. 7a). Такой ход кривой $T_c(d_f)$ наблюдался в сверхрешетках Fe/V [1], Gd/Nb [2] и $V_{1-x}Fe_x/V$ [18]. Кроме того, нами предсказываются и новые варианты немонотонного поведения $T_c(d_f)$, характерные только для сверхрешеток FM/S: возвратная сверхпроводимость в виде отдельного 1D-3D($\pi 0$) пика (рис. 7b) и осцилляционное обращение T_c в нуль в результате 3D(00)-1D($\pi 0$)-3D($\pi 0$) переходов (рис. 7d). Точки фазовых переходов, в которых период 2D модуляции парной амплитуды в плоскости FM/S-границ обращается в бесконечность ($q_f=0$), соответствуют тройным точкам Лифшица.

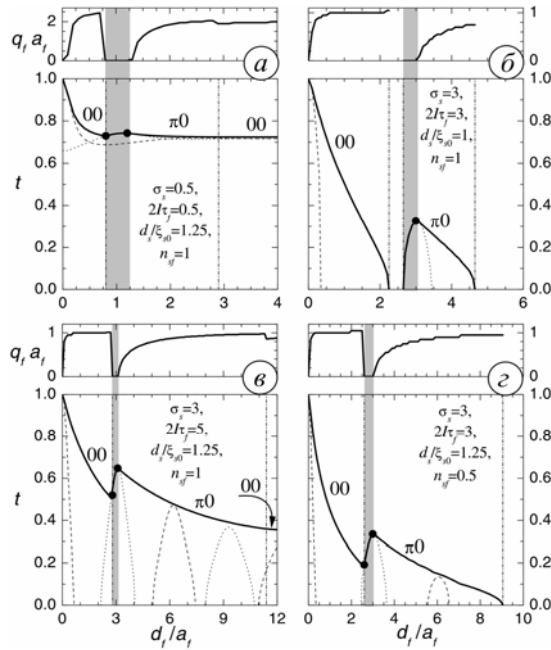


Рис 7. Фазовые диаграммы $t(d_f/a_f)$ и $q_f a_f(d_f/a_f)$ для сверхрешетки FM/S ($d_s > d_s^\pi$) при $l_s = 0.25\xi_{s0}$ для различных значений параметров теории. Обозначения те же, что на рис. 3. 1D-решения для фазы 00 соответствуют тонкие штриховые линии, а для фазы 0π – линии точек. Сплошные жирные линии - результат конкуренции 3D и 1D состояний ЛОФФ. Рисунок взят из работы [44]

Обсуждение результатов

Для слоистых структур FM/S развита оригинальная теория эффекта близости, учитывающая конечную прозрачность границы раздела металлов, влияние

рассеяния на примесях, а также конкуренцию между 1D и 3D состояниями ЛОФФ. Возникновение новых 3D неоднородных сверхпроводящих состояний есть следствие конкуренции между нормальными (1D) и тангенциальными (2D) процессами переброса импульса пар ЛОФФ и БКШ на границе раздела FM/S. Так возникает новая модель сверхпроводящего состояния в структурах FM/S. Согласно этой модели решетка пар ЛОФФ играет весьма активную роль в процессах перехода и взаимного превращения пар БКШ и ЛОФФ на границе FM/S (см. рис. 1). Пара ЛОФФ, переходя из FM-слоя в S-слой, отдает избыточный импульс $\mathbf{k}$ решетке ЛОФФ и превращается в пару БКШ. В свою очередь пара БКШ, уходя из S-слоя в FM-слой, приобретает у решетки ЛОФФ недостающий импульс $\mathbf{k}$ и становится парой ЛОФФ. Таким образом, процессы перехода и взаимного превращения пар на FM/S-границе являются *процессами рассеяния с перебросом*, при которых квазиимпульс пар $\mathbf{k}$ сохраняется с точностью до вектора обратной решетки ЛОФФ $\mathbf{G}$. При этом $\mathbf{G}$ имеет как нормальную, так и тангенциальную составляющую. Изложенная физика эффекта близости заключена в новых граничных условиях (17), выведенных для случая грязного ферромагнетика с $2I\tau_j \ll 1$, когда движение квазичастиц носит преимущественно диффузионный характер. Эти условия позволяют качественно понять физику явления также в случае относительно чистого ферромагнитного металла с $2I\tau_j \ll 1$ и $I \ll \pi T_c$ (см. обсуждение формул (29),(30)). Однако точные граничные условия для парной амплитуды в чистом пределе с учетом 2D процессов переброса еще требуют своего окончательного вывода.

Использованные в ранних теориях эффекта близости [6,7,10,18,24,40,41] для структур FM/S граничные условия Куприянова-Лукичева (КЛ) [42] являются частным случаем условий (17) при $I = g = 0$. Выведенные для контакта нормального металла со сверхпроводником в грязном пределе условия КЛ [42] неадекватны 3D природе спаривания ЛОФФ в FM-слоях. Они допускают лишь 1D состояния с перебросом импульса пар только по нормали к границе раздела FM/S. Вследствие этого важный класс 3D состояний ЛОФФ с перебросом импульса пар вдоль поверхности FM/S исключается из рассмотрения, что является ошибочным, несмотря на попытку в комментарии [43] к обзору [44] оправдать применимость граничных условий КЛ к системе FM/S (подробнее см. наш ответ [45] на комментарий [43]). Таким образом, истинная теория эффекта близости в структурах FM/S должна быть трехмерной. К сожалению, не все это понимают и продолжают публиковать частные результаты, следующие из 1D теории эффекта близости. Эти результаты могут приводить к ошибочной трактовке физики явления и к завышению или, напротив, к занижению параметров теории. Поэтому старые одномерные решения, несомненно, нужно пересмотреть в свете 3D граничных условий типа (17) и откорректировать должным образом. В связи с этим отметим также 1D граничные условия [46], обобщающие вывод условий КЛ [42] и на структуры FM/S. Очевидно, что применение

таких 1D граничных условий к вычислению критической температуры приведет к множественным осцилляциям зависимости $T_c(d_f)$, характерным для квазиодномерных систем FM/S (см. обзор [44]). Собственно только это и подтвердили расчеты тех же авторов [47], основанные на их же граничных условиях [46]. В то же время реальные структуры FM/S являются трехмерными, а экспериментальные зависимости $T_c(d_f)$ обладают немонотонным поведением другого вида, например, с ярко выраженным минимумом или единичным всплеском [44].

Важно отметить, что и для бислоев, и для сверхрешеток FM/S появление 3D состояний ЛОФФ, наряду с состояниями 1D, предотвращает раннее обращение T_c в нуль с ростом d_f и увеличивает площадь сверхпроводящих участков фазовых диаграмм $T_c(d_f)$. Более того, именно каскад фазовых переходов 3D-1D-3D отвечает за немонотонный характер зависимости $T_c(d_f)$ при определенных толщинах FM-слоя и отсутствие осцилляций при больших толщинах d_f . Наш анализ показывает, что различия в поведении функции $T_c(d_f)$ у разных экспериментальных групп для одних и тех же по составу мультислоев FM/S объясняется, по-видимому, различиями в величине параметров σ_s и $2l_{Tf}$, т.е. в прозрачности FM/S-границ и в чистоте FM-слоев. В свою очередь, это может быть связано с различиями в методике и условиях приготовления образцов.

Автор глубоко благодарен своему Учителю профессору Кочелаеву Борису Ивановичу за привитие физического мышления и поддержку первых шагов в науке. Автору также приятно выразить искреннюю признательность своему коллеге профессору Прошину Ю.Н., при непосредственном участии которого были получены многие из представленных здесь результатов. Кроме того, автор благодарен Институту физики комплексных систем им. Макса Планка (г. Дрезден, Германия) за великолепные условия для работы, а также профессору Фульде и участникам его семинара за обсуждение новых результатов, связанных с процессами переброса.

Работа частично поддержана фондами РФФИ (04-0216761) и CRDF (REC-007).

Литература

1. P. Koorewaar, Y. Suzuki, R. Coehoorn, *et al.*, Phys.Rev. **B49**,441 (1994).
2. C. Strunk, C. Surgers, U. Paschen, *et al.*, Phys. Rev. **B49**, 4053 (1994).
3. H.K. Wong, B.Y. Jin, H.Q. Yang,*et al.*, J. Low Temp.Phys. **63**,307 (1986).
4. J.S. Jiang, D. Davidovic, D.H. Reich, *et al.*, Phys. Rev. Lett. 74, 314 (1995).
5. J.S. Jiang, D. Davidovic, D.H. Reich, *et al.*, Phys. Rev. **B54**, 6119 (1996).
6. Z. Radovic, M. Ledvij, L. Dobrosavljevic-Grujic, *et al.*, Phys. Rev. **B44**, 759 (1991).
7. А.И. Буздин, Б. Вуйичич, М.Ю. Куприянов, ЖЭТФ, 101, 231 (1992).

8. Th. Muhge, N.N. Garif'yanov, Yu.V. Goryunov, *et al.*, Phys.Rev.Lett., **77**, 1857 (1996).
9. Th. Muhge, K. Westerholt, H. Zabel, *et al.*, Phys.Rev. **B55**, 8945 (1997).
10. L. Lazar, K. Westerholt, H. Zabel, *et al.*, Phys. Rev. **B61**, 3711 (2000).
11. Ю.Н. Прошин, М.Г. Хусаинов, Письма в ЖЭТФ, **66**, 527, (1997).
12. M.G. Khusainov, Yu.N. Proshin, Phys. Rev. **B56**, 14283 (1997).
13. Ю.Н. Прошин, М.Г. Хусаинов, ЖЭТФ, **113**, 1708 (1998).
14. Y. Obi, V. Ikebe, T. Kubo, H. Fujimori, Physica C, **317-318**, 149 (1999).
15. F.Y. Ogrin, S.L. Lee, A.D. Hillier, *et al.*, Phys. Rev. **B62**, 6021 (2000).
16. N.N. Garif'yanov, Yu.V. Goryunov, Th. Muhge, *et al.*, Eur. Phys. J., **B1**, 405 (1998).
17. J.E. Mattson, R.M. Osgood III, C.D. Potter, *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. A, **15**, 1774 (1997).
18. J. Aarts, J.M.E. Geers, E. Bruck, A.A. Golubov, R. Coehoorn, Phys. Rev. **B56**, 2779 (1997).
19. Th. Muhge, K. Theis-Bröhl, K. Westerholt, *et al.*, Phys. Rev. **B57**, 5071 (1998).
20. G. Verbank, C.D. Potter, V. Metlushko, *et al.*, Phys. Rev. **B57**, 6029 (1998).
21. I.A. Garifullin, D.A. Tikhonov, N.N.Garif'yanov, *et al.* Phys. Rev. **B66**, 020505(R) (2002).
22. А.И. Ларкин, Ю.Н. Овчинников, ЖЭТФ, **47**, 1136 (1964).
23. P. Fulde, R.A. Ferrell, Phys. Rev., **A135**, 550 (1964).
24. E.A. Demler, G.B. Arnold, M.R. Beasley, Phys. Rev. **B55**, 15174 (1997).
25. Л.Г. Асламазов, ЖЭТФ, **55**, 1477 (1968).
26. S. Takada, Progr. Theor. Phys., **43**, 27 (1968).
27. М.Г. Хусаинов, Письма в ЖЭТФ, **61**, 947 (1995).
28. М.Г. Хусаинов, ЖЭТФ, **109**, 524 (1996).
29. М.Г. Хусаинов, ЖЭТФ, **110**, 966 (1996).
30. Ю.А. Изюмов, Ю.Н. Прошин, М.Г. Хусаинов, Письма в ЖЭТФ, **71**, 202 (2000).
31. M.G. Khusainov, Yu.A. Izyumov, Yu.N. Proshin, Physica B, **284-288**, 503 (2000).
32. М.Г. Хусаинов, Ю.А. Изюмов, Ю.Н. Прошин, Письма в ЖЭТФ, **73**, 386 (2001).
33. Yu.N. Proshin, Yu.A. Izyumov, M.G. Khusainov, Phys. Rev. **B64**, 064522 (2001).
34. А.А. Абрикосов, Л.П. Горьков, И.Е. Дзялошинский, Методы квантовой теории поля в статистической физике, М.: Наука, 1962.
35. Л.П. Горьков, А.И. Русинов, ЖЭТФ, **46**, 1363 (1964).
36. А.А. Абрикосов, Основы теории металлов, М.: Наука, 1987.
37. P. Fulde, A. Luther, Phys. Rev., **175**, 337 (1968).
38. L.L. Hirst, Phys. Rev., **141**, 503 (1966).
39. J.I. Kaplan, Phys. Rev., **143**, 351 (1966).
40. L.R. Tagirov, Physica C, **307**, 145 (1998).
41. L.R. Tagirov, Phys. Rev. Lett., **83**, 2058 (1999).
42. М.Ю. Куприянов, В.Ф. Лукичев, ЖЭТФ, **94**, 139 (1988).
43. Я.В. Фоминов, М.Ю. Куприянов, М.В. Фейгельман, УФН, **173**, 113 (2003).

44. Ю.А. Изюмов, Ю.Н. Прошин, М.Г. Хусаинов, УФН, **172**, 113 (2002).
45. М.Г. Хусаинов, Ю.Н. Прошин, УФН, **173**, 1385 (2003).
46. Б.П. Водопьянов, Л.Р. Тагиров, Письма в ЖЭТФ, **77**, 153 (2003).
47. Б.П. Водопьянов, Л.Р. Тагиров, Письма в ЖЭТФ, **78**, 1043 (2003).
48. R.M. Hornreich, M.Luban, S.Strikman, Phys. Rev. Lett., **35**, 1692 (1975).
49. Б.И. Кочелаев, Л.Р. Тагиров, М.Г. Хусаинов, ЖЭТФ, **76**, 578 (1979).
50. Ч. Киттель, Введение в физику твердого тела, М.: Наука, 1978.

**NONUNIFORM SUPERCONDUCTING STATES
AND UMKLAPP PROCESSES
IN FERROMAGNET–SUPERCONDUCTOR NANOSTRUCTURES**

M.G. Khusainov

Kazan state university, Kazan, Russia

Kazan state technical university, branch "Vostok", Chistopol', Russia

For the layered ferromagnetic metal/superconductor (FM/S) structures new boundary-value problem, which takes into account a competition between the one-dimensional (1D) and three-dimensional (3D) realizations of the Larkin-Ovchinnikov-Fulde-Ferrell states, is derived. Superconductivity in the FM/S structures proves to be a superposition of the BCS pairing with zero total momentum in the S layers and the FFLO pairing with nonzero pair momentum $\mathbf{k}$ in the FM layers. It is shown that processes of transition and mutual transformation of the BCS and FFLO pairs at the FM/S boundary occur as the Umklapp processes during which the coherent pair momentum $\mathbf{k}$ is conserved with exactness up to the reciprocal LOFF lattice vector $\mathbf{G}$. These Umklapp processes can occur both in normal (1D states) and in the tangent (3D states) directions with respect to the FM/S interface. It is found that nonmonotonic behavior of the critical temperature T_c in the FM/S bilayers is caused by the oscillations of the Cooper pairs flux through the S/FM boundary due to 3D-1D-3D phase transition cascade and switching between normal and tangent Umklapp processes. For the FM/S superlattices the existence of new π -magnetic 0π and $\pi\pi$ LOFF states, which at certain conditions can have a much higher T_c than earlier known 0-magnetic 00 and $\pi 0$ LOFF states, is discovered. The T_c nonmonotony in the FM/S superlattices may be due to the 3D(0π)-1D($\pi\pi$)-3D($\pi\pi$) phase transitions cascade at small S interlayer thickness or due to another chain of the 3D(00)-1D($\pi 0$)-3D($\pi 0$) transitions at larger S interlayer thickness.

ENSEMBLE SILICON-BASED NMR QUANTUM COMPUTERS

A.A. Kokin, K.A. Valiev

Institute of Physics and Technology of RAS 117218 Moscow, Russia

As an ensemble scheme of solid-state NMR quantum computers the scheme based on the array of ^{31}P donor atoms which are spaced lengthwise of the strip gates is considered. The possible planar topology of such ensemble quantum computer is suggested. The estimation of the output NMR signal is performed and it is shown that for the number $N \geq 10^5$ of ensemble elements involving $L \sim 10^3$ qubits each, the standard NMR methods are usable. As main mechanisms of decoherence for low temperature (< 0.1 K), the adiabatic processes of random modulation of qubit resonance frequency determined by secular part of nuclear spin hyperfine interaction with electron magnetic moment of basic atom and dipole-dipole interaction with nuclear moments of neighboring impurity atoms was considered. Estimations of allowed concentrations of magnetic impurities and of spin temperature whereby the required decoherence suppression are obtained. Semiclassical decoherence model of two qubit entangled states is also presented.

Introduction

Atomic nuclei with spin quantum number $I = 1/2$ are the *natural candidates* for qubits in quantum computers. The early approach to NMR quantum computers was suggested in 1997 [1,2] and then confirmed in experiments [3,4]. In this search several diamagnetic organic liquids whose individual molecules, having a number of interacting non-equivalent nuclear spin-qubits with $I=1/2$ and being nearly independent on one another where used. They act in parallel as an ensemble of *almost independent* quantum molecule-microcomputers. In so doing the nuclear spins of an individual molecule are described by mixed state density matrix of *reduced quantum ensemble*. *Initialization* of the nuclear spin states in this case means the transformation of mixed state into so called, effective or *pseudo-pure* state [1,2,4,5].

The access to individual qubits in a liquid sample is replaced by simultaneous access to related qubits in all molecules of a bulk ensemble. Computers of this type are called *bulk-ensemble* quantum computers. The liquid-based quantum computer can operate at *room temperature*. For control and measurements of qubit states the standard NMR technique is used.

The principle one-coil scheme of experiment and some notations are shown in Fig. 1. The sample is placed in the constant external magnetic field $\mathbf{B}$ and in the alternating (say, linearly polarized) field $\mathbf{b}(t)$, produced by RF voltage $V_\omega(t)$:

$$\mathbf{B}(t) = \mathbf{B} + \mathbf{b}(t) = B\mathbf{k} + 2b\cos(\omega t + \varphi)\mathbf{i}, \quad (1)$$

where $\mathbf{i}$ and $\mathbf{k}$ are unit vectors along the axes x and z .

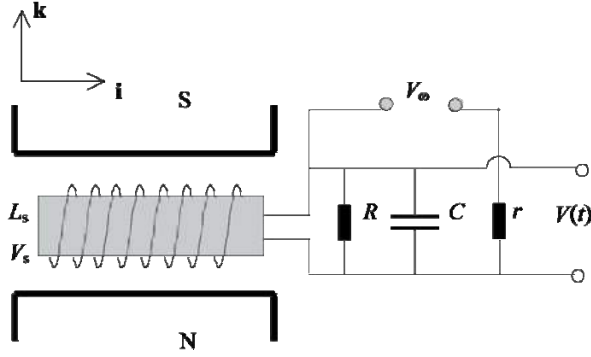


Fig. 1. The principle one-coil scheme of NMR measurement

Let the sample represent an ensemble of N molecule–microcomputers with L qubits each at temperature $T = 300$ K, in the external magnetic fields $B = 1\text{--}10$ T. The resonance nuclear spin frequency is $\omega_A/2\pi \sim \gamma_I B/2\pi < 150$ MHz, γ_I is gyromagnetic ratio of nuclear spin ($\gamma_I \sim \gamma_N = 95.8$ radMHz/T), $\hbar\omega_A/kT < 10^{-5}$.

The output oscillating voltage $V(t)$ is

$$V(t) = QKd\Phi(t)/dt = \mu_0 QKA dM_x(t)/dt, \quad (2)$$

where $\Phi(t) = \int_A \mu_0 M_x(t) dydz$ is magnetic flux produced by resonant spins in the coil ($\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-1} \text{ T}^2 \text{ cm}^3/\text{J}$, $L_s = \mu_0 (KA)^2/V_s$ is solenoid inductance of the resonance contour, V_s is volume of the solenoid, K is the number and A is area of coil turns, $Q = R/(\omega_A L_s) > 10^2$ is the *quality factor* of resonance contour for parallel connected resistance R (Fig. 1). For resonance condition: $\omega = \omega_A = (L_s C)^{-1/2}$.

The maximum nuclear spin read-out magnetization $M_{x\max}$ (the liquid sample is considered here to be a continuous medium and to have volume $V \sim V_s$) at *optimum resonance condition* is defined by the amplitude of RF field $b = 1/(\gamma_I \sqrt{T_{\perp I} T_{\parallel I}})$ [6] (see also (20) below):

$$M_{x\max} = M_{zm} \sqrt{T_{\perp I} / T_{\parallel I}} / 2 \approx \gamma_I \hbar / 2 \cdot (N/V_s) \cdot \varepsilon(L) / 2, \quad (3)$$

where M_{zm} is maximum equilibrium nuclear magnetization, $T_{\perp I}$ and $T_{\parallel I}$ are effective transverse and longitudinal relaxation times, N is number of resonant nuclear spins (one in a molecule) in volume V_s . Parameter $\varepsilon(L)$ is the maximum probability of the full nuclear polarization in pseudo-pure state $P_I = 1$ [7]. It may be estimated by the difference of equilibrium population between the lowest and the highest energy states. For nearly homonuclear L -spin system [7] it is:

$$\varepsilon(L) = \frac{2 \sinh(L \hbar \omega_A / 2kT)}{2^L \cosh^L(\hbar \omega_A / 2kT)}. \quad (4)$$

In the high temperature limit $\hbar \omega_A / (kT) \ll 1$ we have $\varepsilon(L) = L 2^{-L} \hbar \omega_A / (kT)$, that is, the signal amplitude *exponentially drops* with the number of qubits, but it *does not* drop for $\hbar \omega_A / (kT) \gg 1$ when $\varepsilon(L) = 1$ (the pure ground nuclear spin quantum state).

The maximum NMR signal intensity S is defined by amplitude

$$S = |V_{\max}| = (\mu_0 / 4) QKA (N / V_s) \gamma_I \hbar \omega_A \varepsilon(L), \quad (5)$$

where the product KA can also be expressed as

$$KA = (L_s V_s / \mu_0)^{1/2} = (R V_s / (\mu_0 Q \omega_A))^{1/2}. \quad (6)$$

For the root-mean square noise voltage in the measurement circuit we write

$$V_N = \sqrt{4kTR\Delta\nu}, \quad (7)$$

where as a rule the amplifier bandwidth is $\Delta\nu \sim 1$ Hz.

So for *signal to noise ratio* we obtain

$$(S / N) \equiv |V_{\max}| / V_N \cong \frac{1}{8} \sqrt{\frac{\mu_0 \hbar Q \hbar \omega_A}{\Delta\nu V_s kT}} \gamma_I N \varepsilon(L) \sim \\ \sim 0.2 \sqrt{(Q / V_s) \cdot (\hbar \omega_A / kT) N \varepsilon(L)} \cdot 10^{-9}, \text{ (here } V_s \text{ in cm}^3 \text{)} \quad (8)$$

For example, for two qubit molecules ($L = 2$), with, $\varepsilon(L) = \hbar \omega_A / (2kT) \sim 10^{-5}$, we can make an estimation

$$(S / N) \sim (Q / V_s)^{1/2} N \cdot 10^{-16}. \quad (9)$$

Thus, to keep the value $(S/N) > 1$, the number of resonant nuclear spins for two qubit liquid ensemble at room temperature, $V_s \sim 1 \text{ cm}^3$ and $Q \sim 10^3$, is bound to be $N > 10^{16}$.

In the case of *paramagnetic liquids*, one would expect that the number of polarized nuclei may be increased with dynamic polarization (say, Overhauser effect). Assuming electron and nuclear gyromagnetic ratio $\gamma_e / \gamma_I \sim 10^3$ we obtain that in the probability $\varepsilon(L)$ for a L -qubits single state the value $\hbar \omega_A / (kT)$ in (8) should be replaced by $10^3 \hbar \omega_A / (kT)$. Therefore, for the same value $\varepsilon(L)$ and number of molecules N , the allowed number of qubits L approximately will be estimated from

$$L 2^{-L} > 10^{-3}, \quad (10)$$

whence it follows that $L < 12$ qubits.

An additional increase of read-out NMR signal may be obtained in paramagnetic liquids using the ENDOR technique. It is generally believed that for the liquid bulk-ensemble quantum computers a *limiting value* is $L < 20\text{-}30$ [7].

There are five basic criteria for realization of a *large-scale NMR quantum computer*, which can outperform all traditional classical computers [8]:

1. For any physical system, which presents large-scale quantum register, the necessary number of qubits in quantum register must be $L > 10^3$.
One such example of this register is solid-state homonuclear system in which identical atoms containing nuclear spins are housed at regular intervals in a natural or an artificial solid-state structure.
2. There is a need to provide the conditions for preparation of initial basic quantum register state. For a many-qubit solid-state NMR quantum computer the quantum register state initializing can be obtained by going to *extra-low nuclear spin temperature* (<1 mK at fields of order of several Tesla).
3. The decoherence time of qubit states T_d should be at least up to 10^4 times longer than the ‘clock time’, that is value of order of several seconds for NMR quantum computers. *The decoherence suppression is one of the important problems* in realization of a large-scale quantum computers.
4. There is a need to perform during a decoherence time a set of quantum logic operations determined by a logic unitary transformation. This set should contain certain set of the one-qubit and two-qubit operations which are shielded from random errors. The electromagnetic pulses that control the quantum operation should be performed with an accuracy of better than 10^{-4} – 10^{-5} .
5. There is a need to provide *accurate and sensitive read-out measurements of the qubit states*. This is another one of the important and hard problems.

The design of solid-state NMR quantum computers was proposed by B. Kane in [9,10]. It was suggested to use a semiconductor MOS structure on a ^{28}Si spinless substrate, in a near-surface layer where stable phosphorus isotopes ^{31}P , acting as donors, are implanted in the form of a regular chain. These donors have a nuclear spin $I=1/2$ and substitute silicon atoms at the lattice sites, producing shallow impurity states. The number of donors or the qubit number L in such a quasi-one-dimensional *artificial ‘molecule’* may be arbitrary large. It is suggested an *individual* nuclear spin-qubit electrical control and measurement of qubit states with the use of special gate structures. The experimental implementation of Kane’s scheme is undertaken now in Australian Centre for Quantum Computer Technology [11,12].

However, there are four essential difficulties in implementing this quantum computer:

1. First of all, signal from the spin of an individual atom is very small and *high sensitive single-spin measurements* are required.
2. It is required for initialization of nuclear spin states to use *very low nuclear spin temperature* ($\sim$ mK).
3. It is required to use regular donors and gates arrangement with high precision in *nanometer scale*.

4. It is necessary to suppress the quantum states *decoherence* defined by *fluctuations* of gate voltage.

As an alternative, we proposed the variant of *an ensemble silicon-based quantum computer* [13,14]. One would expect that with the ensemble approach, where many independent ‘molecules’ of Kane’s type work simultaneously, the measurements would be greatly simplified. Here we will give some further development of this scheme.

1. The silicon structure with regular system of strip gates

In this case, unlike the structure suggested in [9], gates **A** and **J** form a chain of narrow ($l_A \sim 10$ nm) and long strips along which donor atoms at l_y distant from each other are placed (Fig. 2). Thus, they form a *regular* structure of the planar silicon topology type.

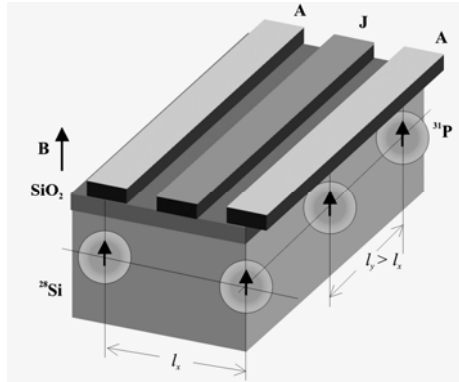


Fig. 2. The structure of two qubit cells for three-ensemble component

The separation between neighboring donor atoms in Si, as in Kane’s scheme, must be $l_x \leq 20$ nm. In this case, the interqubit interaction is controlled by gates **J**. The depth of donor d is ~ 20 nm. For $l_y \gg l_x$ the exchange spin interaction between electrons of donor atoms disposed along the strip gates (y -axis) is negligibly small. Hence, such a system breaks down into an ensemble of near-independent Kane’s artificial ‘molecule’, whose electronic spins at temperature $T \leq 0.1$ K are initially fully aligned with the field of several Tesla ($\gamma \hbar B / kT \gg 1$). As in case of liquids, the nuclear spin states of individual Kane’s chain-‘molecule’ will be described by density matrix of reduced quantum ensemble. Access to individual qubits will be replaced by simultaneous access to related qubits in all ‘molecules’ of ensemble.

The linear qubit density in the artificial ‘molecules’ is ~ 50 qubits on micrometer. For the realization of considered structure, as well as of the Kane’s scheme, *the nanotechnology* with resolution of the order of ~ 1 nm is also needed.

For the *initializing* of all nuclear spin-qubit quantum states (fully polarized nuclear spins) there is a need to attain, for the time being, nuclear spin temperature $T \leq 10^{-3}$ K. An output signal in this system, as in liquids, will be proportional to the number of ‘molecules’ or donor atoms N (component number of our ensemble) in the chain along axis y . In the following, the lower value of N will be estimated.

2. The states of insulated donor atoms in magnetic fields

The electron-nuclear spin Hamiltonian for a donor atom ^{31}P has the form

$$H = \gamma_e \hbar \mathbf{B} \mathbf{S} - \gamma_I \hbar \mathbf{B} \mathbf{I} + A \mathbf{I} \mathbf{S}, \quad (11)$$

four energy levels of which are given by the well-known Breit-Rabi formula. For $I = 1/2, S = 1/2$ (the z -axis is parallel to $\mathbf{B}$) this formula is written as

$$E(F, m_F) = -\frac{A}{4} - \gamma_I \hbar B m_F - (-1)^F \text{sign}(1 + m_F X) \frac{A}{2} \sqrt{1 + 2m_F X + X^2}, \quad (12)$$

where constant of hyperfine interaction $A/(2\pi\hbar) = 116$ MHz [15], $X = (\gamma_e + \gamma_I)\hbar B/A \approx \gamma_e \hbar B/A \ll 1$, $F = I \pm 1/2 = 1, 0$, and $m_F = M + m = \pm 1, 0$, if $F = 1$ or $m_F = 0$, if $F = 0$ (Here $M = \pm 1/2$ and $m = \pm 1/2$ are z -projections of electron and nuclear spins accordingly). The energy level scheme is shown in Fig. 3. For the energy of the ground spin state, $F = 0$ and $m_F = 0$, hence, we obtain

$$E(0, 0) = -A/4 - (A/2)\sqrt{1 + X^2}. \quad (13)$$

For the next, excited energy state, $F = 1, m_F = -1$ we have

$$E(1, -1) = A/4 - (\gamma_e - \gamma_I)\hbar B/2. \quad (14)$$

Thus, the energy difference between the two lower states of the nuclear spin (the resonant qubit frequency), that interacts with an electron, whose state remains unchanged, is described in simple terms ($\gamma_e \gg \gamma_I$ for $X \approx \gamma_e \hbar B/A \ll 1$):

$$\begin{aligned} \hbar \omega_A^+ &= E(1, -1) - E(0, 0) = A/2 + (\gamma_I - \gamma_e)\hbar B/2 + \frac{A}{2}\sqrt{1 + X^2} \approx \\ &\approx \gamma_I \hbar B + \frac{A}{2} + \frac{A^2}{4\gamma_e \hbar B}, \\ \hbar \omega_A^- &= E(1, 1) - E(1, 0) \approx -\gamma_I \hbar B + \frac{A}{2} + \frac{A^2}{4\gamma_e \hbar B}. \end{aligned} \quad (15)$$

For ^{31}P donor atoms: $\gamma_e = 176.08$ radGHz/T, $\gamma_I = 1.13\gamma_N = 108$ radMHz/T, $\gamma_e / \gamma_I = 1.62 \cdot 10^3$. In magnetic field $B = 1$ T: $\omega_A^+ / 2\pi = 75$ MHz, $\omega_A^- / 2\pi = 41$ MHz.

The frequencies ω_S , ω_B , ω_C , ω_D are in microwave, $\omega_A^\pm$ – in the RF ranges of frequencies. The transitions with frequencies ω_S in the first approximation are *forbidden*.

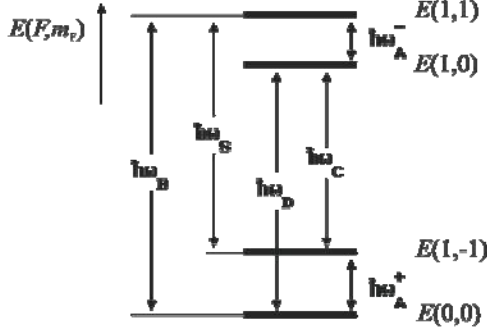


Fig. 3. Energy levels of an individual donor atom in magnetic field

The states $|F, m_F\rangle$ in M, m basis are

$$\left. \begin{aligned} |1,1\rangle &= |1/2, 1/2\rangle \\ |1,-1\rangle &= |-1/2, -1/2\rangle \\ |1,0\rangle &= (1-\alpha)^{1/2} |1/2, -1/2\rangle + \alpha^{1/2} |-1/2, 1/2\rangle \\ |0,0\rangle &= (1-\alpha)^{1/2} |-1/2, 1/2\rangle - \alpha^{1/2} |1/2, -1/2\rangle \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

$$\alpha = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{X}{\sqrt{1+X^2}} \right) \approx 1/(4X^2) \ll 1$$

The diagonal matrix elements of nuclear magnetization M_z per one donor atom for two lower energy states will be determined by

$$\begin{aligned} \langle 0,0 | M_z | 0,0 \rangle &= \langle 0,0 | I_z | 0,0 \rangle \gamma_I \hbar = \frac{X}{\sqrt{1+X^2}} \gamma_I \hbar / 2 \approx \gamma_I \hbar / 2, \\ \langle 1,-1 | M_z | 1,-1 \rangle &= \langle 1,-1 | I_z | 1,-1 \rangle \gamma_I \hbar = -\gamma_I \hbar / 2. \end{aligned} \quad (17)$$

The probabilities of the L -qubit lowest and highest energy fully filling states for the same electron spin state $M = -1/2$, which correspond, as noted above, to the maximum probability of the nuclear polarization in pseudo-pure state, are:

$$p^L(1, -1) = \frac{\exp(-L\hbar\omega_A^+ / 2kT)}{(\exp(\hbar\omega_A^+ / 2kT) + \exp(-\hbar\omega_A^+ / 2kT))^L}, \quad (18)$$

$$p^L(0, 0) = \frac{\exp(L\hbar\omega_A^+ / 2kT)}{(\exp(\hbar\omega_A^+ / 2kT) + \exp(-\hbar\omega_A^+ / 2kT))^L}.$$

The possible maximum nuclear magnetization M_{zm} (the populations of states $|1,1\rangle$ and $|1,0\rangle$ are negligible for $\omega_s, \omega_B, \omega_C \ll \omega_A^+$) is

$$M_{zm} = \gamma_I \hbar / 2 \cdot (N / V_c) \left(\frac{\exp(L\hbar\omega_A^+ / 2kT)}{(\exp(\hbar\omega_A^+ / 2kT) + \exp(-\hbar\omega_A^+ / 2kT))^L} - \frac{\exp(-L\hbar\omega_A^+ / 2kT)}{(\exp(\hbar\omega_A^+ / 2kT) + \exp(-\hbar\omega_A^+ / 2kT))^L} \right) = \gamma_I \hbar / 2 \cdot (N / V_c) \varepsilon(L). \quad (19)$$

For $L\hbar\omega_A^+ / 2kT \ll 1$ and $X \ll 1$ we obtain (compare with (3))

$$M_{zm} \approx \gamma_I \hbar / 2 \cdot (N / V_c) \cdot 2^{-L} L (\hbar\omega_A^+ / kT). \quad (20)$$

But for very low temperatures ($\hbar\omega_A^+ / 2kT \gg 1$) we have the *full nuclear polarization* $M_{zm} \approx \gamma_I \hbar / 2 \cdot (N / V_c)$ and $\varepsilon(L) = 1$.

3. The gain effect for NMR signal

Transitions between two lower states are induced by a RF magnetic field, applied at a resonant frequency ω_A^+ . The Rabi resonance frequency Ω , which is defined by matrix elements of the Hamiltonian of the spin interaction with the external RF field $\mathbf{b}(t)$

$$H_{rf}(t) = (\gamma_e S_x - \gamma_I I_x) \hbar b_x(t), \quad b_x(t) = 2b \cos(\omega_A^+ t) \quad (21)$$

can be found from

$$\Omega = \gamma_I b_{eff}(X) = 2 \left| \langle 0, 0 | H_{rf}(0) | 1, -1 \rangle \right| / \hbar. \quad (22)$$

For the amplitude of effective RF field, acting on nuclear spin, $b_{eff}(X)$ we obtain

$$b_{eff}(X) = b \left(\alpha^{1/2} (\gamma_e / \gamma_I) + (1 - \alpha)^{1/2} \right) \quad (23)$$

where b is the amplitude of circularly polarized field component.

The Rabi frequency has the maximum value for $X=0$ ($\alpha=1/2$) and monotonically reduces to value for the insulated nuclear spin ($\alpha \rightarrow 0$), $\gamma_I b_{eff}(X \ll 1) = \gamma_I b$. From the rate of quantum operation standpoint it is desirable to operate in relatively weak fields [10], at which $\gamma_e / \gamma_I \ll X \approx \gamma_e \hbar B / A \ll 1$ or $3.5 \text{ T} > B \gg 3.9 \cdot 10^{-3} \text{ T}$.

In this case from (23) we will obtain

$$b_{\text{eff}} = (1 + \eta)b \gg b, \quad (24)$$

where $\eta = A/(2\gamma_I \hbar B) \gg 1$ is the *gain factor*. Under these conditions, RF field operates through the transverse component of electronic polarization. For magnetic fields $B = 1$ T we have the value $b_{\text{eff}} = 4.4b$, and for $B = 0.01$ T we have the value $b_{\text{eff}} = 338b$. The gain effect involves an increase of NMR signal and Rabi frequency. This effect was indicated previously by K. Valiev in [16].

In the pulse technique, this effect makes it possible to *decrease the length of pulse* and along with it the times of logic operation performing. Moreover, the computer operations, owing to this effect, can be performed at lower RF fields. At last, it permits to *reduce the RF field influence* on the operation of neighboring semiconductor devices.

To describe the nuclear dynamics for the two low-lying level systems being discussed ($X \neq 1$), we can write the following Bloch-type equation with only two effective relaxation times:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma_I [\mathbf{M} \times \mathbf{B}_{\text{eff}}] - \frac{M_x \mathbf{i} + M_y \mathbf{j}}{T_{\perp I}} - \frac{(M_z - M_{zm}) \mathbf{k}}{T_{\parallel I}}, \quad (25)$$

where $\mathbf{i}, \mathbf{j}, \mathbf{k}$ are orthogonal unit vectors (Fig. 1), M_{zm} is defined as (19),

$$\mathbf{B}_{\text{eff}} = (\omega_A / \gamma_I) \mathbf{k} + 2b_{\text{eff}} \cos(\omega t) \mathbf{i}. \quad (26)$$

It follows from it that the value of maximum nuclear read-out magnetization in NMR signal $M_{x\text{max}} = M_{zm} \sqrt{T_{\perp I} / T_{\parallel I}} / 2$ can be obtained for $b_{\text{eff}}(X) = 1/(\gamma_I \sqrt{T_{\perp I} T_{\parallel I}})$. Hence, the read-out NMR signal *cannot be increased* through the gain effect over its maximum value, that corresponds to $M_{zm} \sqrt{T_{\perp I} / T_{\parallel I}} / 2$.

4. The signal to noise ratio for an ensemble silicon quantum computer

For the realization of an ensemble silicon quantum register, we propose a variant of planar scheme [17], that, as an example, contains $n \cdot p$ in parallel acting identical blocks, and each block has N_0 in parallel connected L -qubit Kane's linear 'molecules'. This scheme is schematically depicted in Fig. 4.

Let the sample be the silicon (^{28}Si) plate of thickness 0.1 cm. For the full number of computer-'molecules' in ensemble $N = p \cdot N_0 \cdot n$, the volume of sample and of solenoid is $V_s \approx \delta \cdot l_x \cdot l_y \cdot L \cdot N$ (the filling factor is assumed for simplicity to be one).

The read-out signal from such *ensemble in parallel acting* chains, as distinct from liquid prototype, for full nuclear polarization or, what is the same, for nuclear spin temperatures $T_I \leq 10^{-3}$ K has instead of the small factor in intensity of the NMR signal of type $\varepsilon(L) = 2^{-L} L \cdot \hbar \omega_A / (kT)$ the factor $\varepsilon(L) = 1$. The NMR signal from our

sample within a non-essential factor is the same as from macroscopic sample [17]. Therefore, with the expressions (4) and (8), $\hbar\omega_A/(kT_I) < 1$ ($T_I < 1$ mK) and $\varepsilon = 1$ we will obtain as an estimation for maximum signal to noise ratio

$$(S/N) \approx \sqrt{Q\hbar\omega_A/(kTV_s)} \cdot N \cdot 10^{-9} \approx \sqrt{QN/(\delta l_x l_y L)} \cdot 10^{-10}. \quad (27)$$

It is believed that for low temperatures $Q \sim 10^6$. Taking into account that the effective volume of one ‘molecule’ for $l_x = 20$ nm, $l_y = 50$ nm, $L = 10^3$, $V_s = \delta l_x l_y L = 10^{-9}$ cm³ we receive that the read-out signal in our scheme may be available for *standard NMR technique*, if the number of ‘molecules’ in ensemble is of about $N \geq 10^5$. High-sensitive devices for measurement of individual spin-states are not needed.

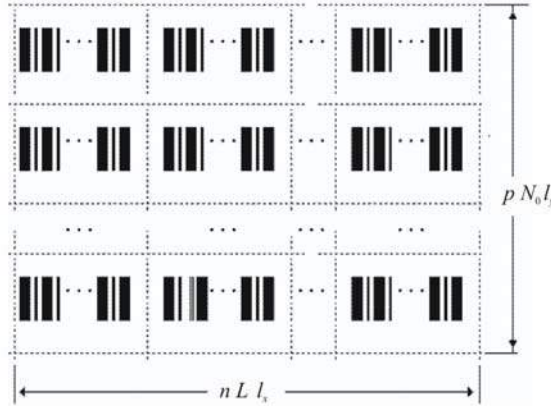


Fig. 4. The scheme of the proposed planar silicon topology with p - n parallel connected blocks of the ensemble L -qubit quantum computers (the connections are not shown here). The broad and narrow lines denote the A and J gates

To estimate the values n , p let us consider the square plate with $50N_0p = 20 \cdot 10^3 n$ and $N_0 = 100$. As a result, we receive $n \approx 16$ and $p \approx 63$. The area of the structure without passive regions is $\sim 315 \times 315 \mu\text{m}^2$. This size is sufficiently small for sample to be housed in the gap between the magnet poles of a standard NMR spectrometer. Real plate may have considerably more area and correspondingly more number of ‘molecules’ N .

For implementation of two-qubit logic operation it is required the controlled by gates J interqubit indirect interaction with characteristic frequency $\nu \sim 100$ kHz $\square \omega_A \sim 100$ MHz. To bring about fault-tolerant quantum computations on large-scale quantum computers the relative error for single logic operation must be no more than $\sim 10^{-5}$ [17]. Hence it follows that a *resolution* bound of the

NMR spectrometer must be of the order of $\sim 100 \text{ kHz} \cdot 10^{-5} \sim 1 \text{ Hz}$, that is consistent with the usual requirements. It is significant that such high precision is needed only for performing the logic quantum operation, but it is not needed for read-out measurements.

The read-out signal may be more increased by means of an electron-nuclear double resonance (ENDOR) methods [18] of observing the electron resonance at transitions with frequencies ω_B and ω_C (Fig. 3).

Consequently, by the use of standard NMR and additionally of ENDOR techniques *the first main difficulty* of Kane's scheme can be overcome.

5. The cooling of nuclear spin system and nuclear state initialization by means of dynamic polarization

The electron and nuclear *longitudinal relaxation times* for the *allowed* transitions in four energy level system of phosphorus-doped silicon have been extensively investigated experimentally in [18, 19]. For the allowed transitions with frequencies ω_B and ω_C (Fig. 3) electron longitudinal relaxation times $\tau_{\parallel B} \approx \tau_{\parallel C}$ were found to be exceedingly long at low temperatures. They are of the order of *one hour* at $T = 1.25 \text{ K}$, $B \sim 0.3 \text{ T}$, are independent of phosphorus concentration below $C \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (mean distance between phosphorus atoms is of the order of 45 nm) and are approximately inversely proportional to the lattice temperature T . The nuclear longitudinal relaxation time $T_{\parallel}$ at the frequency ω_A^+ was found to be equal to 10 hours.

The relaxation time for transition with frequency ω_D , which involves a simultaneous electron-nuclear spin flip-flop, at $T = 1.25 \text{ K}$, $C \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ and $B \sim 0.3 \text{ T}$ was $\tau_{\parallel D} \sim 30 \text{ hours}$ $\square$ $\tau_{\parallel B}, \tau_{\parallel C}$.

The *extremely long relaxation times* of the electron and nuclear spins imply that the required initializing of nuclear quantum states (full nuclear *nonequilibrium polarizations*) can be attained by deep cooling of short duration of *only nuclear spin system* to $T_I \leq 1 \text{ mK}$ without deep cooling of the lattice. There is the possibility to reach it at the *indirect cooling* of nuclear spin system by means of *dynamic nuclear spin polarization techniques* [19].

One such method of dynamic nuclear spin polarization for donor atoms is based on the saturation by *the microwave pumping of the forbidden transition* (frequency ω_S in Fig. 3), that is designated as the Abragam's *solid state effect* [6,19].

Let us consider this effect as applied to the ensemble of ^{31}P atoms. The polarization of electrons $P_S = 2\langle S_z \rangle$ and of nuclei $P_I = 2\langle I_z \rangle$ may be for the sake of simplicity expressed as

$$\begin{aligned} P_S &= p(1,1) + p(1,0) - p(1,-1) - p(0,0) \\ P_I &= p(1,1) + p(0,0) - p(1,0) - p(1,-1), \end{aligned} \quad (28)$$

where $p(F, m_F)$ are the populations of states $|F, m_F\rangle$ (Fig. 3). They also fulfill the requirement

$$p(1,1) + p(1,0) + p(1,-1) + p(0,0) = 1. \quad (29)$$

The rate equations for the populations are (it is assumed, that the relaxation rates for transitions at frequencies $\omega_A^\pm$ are equal to $T_{\parallel A}$):

$$\begin{aligned} \frac{dp(0,0)}{dt} &= (p(1,1) - p(0,0)r_B) / \tau_{\parallel B} + (p(1,0) - p(0,0)r_D) / \tau_{\parallel D} + \\ &\quad + (p(1,-1) - p(0,0)r_A^+) / T_{\parallel A} \\ \frac{dp(1,-1)}{dt} &= (p(1,0) - p(1,-1)r_C) / \tau_{\parallel C} + (p(1,1) - p(1,-1)) \cdot W_e + \\ &\quad + (p(0,0)r_A^+ - p(1,-1)) / T_{\parallel A} \\ \frac{dp(1,0)}{dt} &= (p(1,-1)r_C - p(1,0)) / \tau_{\parallel C} + p(0,0)r_D - p(1,0) + \\ &\quad + (p(1,1) - p(1,0)r_A^-) / T_{\parallel A} \\ \frac{dp(1,1)}{dt} &= (p(0,0)r_B - p(1,1)) / \tau_{\parallel B} + (p(1,-1) - p(1,1)) \cdot W_e + \\ &\quad + (p(1,0)r_A^- - p(1,1)) / T_{\parallel A} \end{aligned} \quad (30)$$

where parameters $r_{B,C,D,A} = \exp(-\hbar\omega_{B,C,D,A}/kT)$ are ratios of rates for the up and down thermal transitions. For values $\hbar\omega_{B,C,D}/kT \ll 1$, $\hbar\omega_A^\pm/kT \ll 1$ ($T \leq 0.1$ K) there are the thermal electron $P_{S0} \approx -1$ and nuclear $P_{I0} = \hbar\omega_A^+ / kT \ll 1$ polarizations.

Let us assume next that the rate of *induced forbidden electron transitions* $|1,1\rangle \Rightarrow |1,-1\rangle$ at frequency ω_S , that is W_S and electron longitudinal relaxation times satisfy the conditions:

$$W_S^{-1} < \tau_{\parallel B} \approx \tau_{\parallel C} \ll T_{\parallel A}, \tau_{\parallel D}, \tau_{\parallel S} \quad (31)$$

where $\tau_{\parallel D}$, $\tau_{\parallel S}$ are the longitudinal relaxation times of electron spins for the forbidden transition. Hereafter we shall write

$$\begin{aligned} \frac{dp(0,0)}{dt} &= p(1,1) / \tau_{\parallel B} + (p(1,-1) - p(0,0)) / T_{\parallel A} \\ \frac{dp(1,-1)}{dt} &= p(1,0) / \tau_{\parallel B} + ((p(1,1) - p(1,-1)) \cdot W_e + (p(0,0) - p(1,-1)) / T_{\parallel A} \end{aligned} \quad (32)$$

$$\frac{dp(1,0)}{dt} = -p(1,0)/\tau_{\parallel B} + (p(1,1) - p(1,0))/T_{\parallel A}$$

$$\frac{dp(1,1)}{dt} = -p(1,1)/\tau_{\parallel B} + (p(1,-1) - p(1,1)) \cdot W_e + (p(1,0) - p(1,1))/T_{\parallel A}.$$

With equations (28),(29),(31) we can obtain the rate equations for P_s and P_I :

$$\begin{aligned} dP_s/dt &= -(P_s + P_I) \cdot W_e - (P_s + 1)/\tau_{\parallel B} \\ dP_I/dt &= -(P_s + P_I) \cdot W_e - P_I/T_{\parallel A} \end{aligned} \quad (33)$$

The steady-state saturation condition ($W_e \ll 1/T_{\parallel A}$) of the transition $|1,1\rangle \Rightarrow |1,-1\rangle$ gives rise to the equalization of the populations $p(1,1) = p(1,-1)$ and to the *full nuclear spin polarization* respectively

$$P_I = -P_s = p(0,0) = 1. \quad (34)$$

It is obvious that this state is equivalent to the state with nuclear spin temperature $T_I < \hbar\omega_A/k \sim 10^{-3}$ K.

Hence, the initialization of nuclear states may be obtained by using ENDOR technique at the lattice temperature of the order of 0.1 K and by this means that *the second difficulty* of Kane's scheme can be overcome.

Notice here that there is also another possibility of ensemble NMR implementation, which does *not have the gate system*. The selectivity of nuclear resonance frequencies for individual qubit in the ensemble of Kane's chains can be achieved, rather than using the A-gate voltage, with the applying of the external magnetic field gradients along axis x . For neighboring qubits separated by ~ 20 nm it is required $dB_z/dx \sim 1$ T/cm (that is feasible now), which produce a resonance frequency difference ~ 100 Hz.

6. The decoherence of nuclear spin states due to the hyperfine interaction of nuclear and electron spins

The relaxation of nonequilibrium state of the nuclear spin system represented by the product of independent (nonentangled) one-qubit states, owing to the interaction with isotropic environment, shows two processes. One is a slow establishment of equilibrium state associated with dissipation of energy. For it, the diagonal elements of density matrix decay with characteristic longitudinal (spin-lattice) relaxation time $T_{\parallel}$. The decay of non-diagonal matrix elements called decoherence of quantum states is characterized by a decoherence time T_d or transverse (spin-spin) relaxation time $T_{\perp}$. The longitudinal relaxation times $T_{\parallel}$ in the case of nuclear spin of ^{31}P atoms as qubits is defined mainly by thermal modulation of qubit resonance frequency accompanied by spin flips. It is usual that for solids $T_{\perp} \ll T_{\parallel}$.

The *internal adiabatic decoherence* mechanisms due to a random modulation of qubit resonance frequency are produced by local fluctuating magnetic fields without spin flips. These fields are determined by secular parts of interactions of nuclear spins with electron spins of the basic phosphorus atoms, with impurity paramagnetic atoms and also with nuclear spins of impurity atoms. We have named this mechanism as *internal*. It seems to be the leading one.

The modulation of nuclear spin resonance frequency $\Delta\omega(t)$, which is determined by the secular part of hyperfine interaction, may be written as

$$\Delta\omega(t) = A(t)S_z(t) - A_0 \langle S_z \rangle \approx A_0(S_z(t) - \langle S_z \rangle) - \Delta A(t) \langle S_z \rangle, \quad (35)$$

where $A(t) = A_0 + \Delta A(t)$, $\Delta A(t)$ is the modulation of hyperfine interaction constant, $A_0 = 725$ rad MHz. The influence of gate voltage noise on this frequency modulation was studied in [9,10,20] and it is not treated here (*external* decoherence process).

Another (internal) modulation mechanism of $A(t)$ is the interaction of donor atoms with acoustic phonons. It is our belief that for very low temperature this mechanism is not essential [21].

Let us consider now the first term in (35). We shall follow the semiclassical model of *adiabatic decoherence of one-qubit state* (Appendix). The correlation function of frequency modulation $\Delta\omega_S(t) = A_0(S_z(t) - \langle S_z \rangle)$ is determined by the fluctuations of electron spin polarization and depends on electron resonance frequency ω_S , longitudinal τ_1 (hours) and transverse τ_2 relaxation times. In adiabatic case $\omega_S = \gamma_S B > 1/\tau_2 \gg 1/\tau_1$ and we obtain:

$$\langle \Delta\omega_S(t) \Delta\omega_S(0) \rangle = \langle \Delta\omega_S^2 \rangle \exp(-t/\tau_1) \quad (36)$$

where

$$\langle \Delta\omega_S^2 \rangle = A_0^2 (\langle S_z^2 \rangle - \langle S_z \rangle^2) = A_0^2 (1 - \tanh^2(\gamma_S \hbar B / 2kT)) / 4. \quad (37)$$

Now, according to (62), for decoherence decrement we obtain

$$\Gamma(t) = \langle \Delta\omega_S^2 \rangle \tau_1^2 (t/\tau_1 - 1 + \exp(-t/\tau_1)). \quad (38)$$

For $\tau_1 \approx 10^4$ s and $t \sim T_d = 1$ s, $1 \ll \langle \Delta\omega_S^2 \rangle \tau_1^2 < (\tau_1/T_d)^2$ we have the non-Markovian random process (slow dampening fluctuations). In this case

$$\Gamma(t) = \langle \Delta\omega_S^2 \rangle t^2 / 2 \quad (39)$$

and the effective decoherence time can be estimated from $T_d \sim \langle \Delta\omega_S^2 \rangle^{-1/2}$.

The necessary value of decoherence time for the NMR quantum computer clock time $\sim 10^{-4}$ s should not exceed several seconds. Therefore, let us write the requirement for $\gamma_e \hbar B / kT \gg 1$ in the form

$$1/T_d^2 \approx A_0^2(1 - \tanh^2(\gamma_e \hbar B / 2kT)) / 4 \approx 2A_0^2 \exp(-\gamma_e \hbar B / kT) < 1\text{s}^{-2}, \quad (40)$$

from which we find that the decoherence suppression will be achieved only at *sufficiently large* $B/T > 30$ T/K. It corresponds to $B = 2$ T for lattice temperatures $T < 0.06$ K.

7. The adiabatic decoherence of nuclear spin states due to interaction with nuclear spins of impurity atoms

The paramagnetic impurity atoms having magnetic moments play also a role of environment for nuclear spins in solid state. However decoherence mechanism due to dipole-dipole interaction of their magnetic moments with nuclear spin-qubits is suppressed to a large extent at $B/T > 30$ T/K thanks to near-full electron spin polarization [21].

Another mechanism of one qubit state decoherence is dipole-dipole interaction with not fully polarized nuclear spins $I \neq 0$ of impurity diamagnetic atoms having concentration $C_{I,imp}$. Isotope ^{29}Si with $\gamma_{I,imp} = -53$ rad MHz/T is one of such atoms. The random fluctuating local field, produced by nuclear spins of impurity atoms has the form

$$\Delta B_\alpha(t) = - \sum_{i,\beta}^N D_{\alpha,\beta}(\mathbf{r}_i) \left(I_{\beta,imp}(\mathbf{r}_i, t) - \langle I_{\beta,imp}(\mathbf{r}_i) \rangle \right), \quad (41)$$

where

$$D_{\alpha,\beta}(\mathbf{r}_i) = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\gamma_I \gamma_{I,imp}}{r_i^3} \left(\delta_{\alpha\beta} - \frac{3r_{i\alpha}r_{i\beta}}{r_i^2} \right) \quad (42)$$

$\mathbf{r}_i$ is the distance-vector to i -th impurity nuclear spin.

In this case correlation function of frequency modulation

$$\begin{aligned} \langle \Delta\omega_S(t) \Delta\omega_S(0) \rangle &= \gamma_I^2 \langle B_z(t) B_z(0) \rangle = \\ &= C_{I,imp} \int \sum_{\beta} D_{z,\beta}(\mathbf{r}) (I_{\beta,imp}(\mathbf{r}, t) I_{\beta,imp}(\mathbf{r}) - \langle I_{\beta,imp}(\mathbf{r}) \rangle^2) d\mathbf{r} \end{aligned} \quad (43)$$

takes the form

$$\langle \Delta_S \omega(t) \Delta_S \omega(0) \rangle = \langle \Delta\omega^2 \rangle \exp(-t / T_{||,imp}), \quad (44)$$

where $T_{||,imp} \approx 10^4$ s is impurity nuclear spin longitudinal relaxation time of isotope ^{29}Si at low temperature [18]. Taking $T_{||,imp}$ to be much more than $T_d \sim 1$ s, for the determination of allowable impurity concentration we obtain equation

$$1/T_d^2 \approx C_{I,imp} \frac{(\mu_0 \gamma_I \gamma_{I,imp} \hbar)^2}{60\pi a^3} \left(1 - \tanh^2(|\gamma_{I,imp}| \hbar B / 2kT_I) \right), \quad (45)$$

where a is the minimal distance to impurity nuclear spin, and for Si a^{-3} is of the order of $5 \cdot 10^{22} \text{cm}^{-3}$.

For $B/T > 30 \text{ T/K}$ and for spin temperature T_I at which there is near-full polarization of nuclear spins

$$|\gamma_{I,imp} \hbar B / k T_I| > 1 \quad (46)$$

or for $T_I < 0.8 \text{ mK}$, we obtain that the allowed concentration of the isotope ^{29}Si is

$$C_{I,imp} \% < 4.5 \cdot 10^{-2} \%. \quad (47)$$

This value can be increased due to the further decrease of nuclear spin temperature T_I . For comparison, natural abundance of isotope ^{29}Si in natural silicon is 4.7%. At present, the realized degree of cleaning ^{28}Si is 99.98%, which does *not fully suit* for our purposes yet.

8. Adiabatic decoherence of entangled two qubit states

In the processes of input of information and logic operation performance, some nonentangled initializing states of quantum register become entangled. The adiabatic process of transverse relaxation may be also the main decoherence mechanism of coherent entangled quantum states.

As a simple example let us consider here the adiabatic decoherence of the pure fully entangled two qubit triplet state of EPR-type $|\psi_{EPR}\rangle = \sqrt{1/2}(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)$ with the zero projection of the total spin on the z-axis, which is described by density matrix

$$\rho_{EPR} = |\psi_{EPR}\rangle\langle\psi_{EPR}| = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (48)$$

The action of the environment on qubit states will be described quasiclassically as correlated random modulation of the qubit resonance frequencies $\Delta\omega_{1,2}(t)$ and of indirect spin-spin interaction parameter $\Delta\omega(t) = \Delta I(t)/2$. The secular part of Hamiltonian for interaction with the environment is represented by

$$\mathbf{H}(t) = -\Delta\omega_1(t)(\sigma_{1z} \otimes \mathbf{1})/2 - \Delta\omega_2(t)(\mathbf{1} \otimes \sigma_{2z})/2 + \Delta\omega_I(t)(\sigma_{1z} \otimes \sigma_{2z})/2, \quad (49)$$

where σ_{1z}, σ_{2z} are Pauli matrices.

The density matrix (48) under the action of random field in the rotating frame with resonance frequency ω_0 is described by expression

$$\rho_{EPR}(t) = \mathbf{U}(t)^{-1} \rho_{EPR} \mathbf{U}(t). \quad (50)$$

In the considered case, the unitary matrix 4×4 $\mathbf{U}(t)$ is ($\varphi_{1,2}(t) = \int_0^t \Delta\omega_{1,2} dt$, $\varphi_I(t) = \int_0^t \Delta\omega_I dt$):

$$\mathbf{U}(t) = (\cos(\varphi_1(t)/2)\mathbf{1} + i \sin((\varphi_1(t)/2)\sigma_{1z}) \otimes (\cos(\varphi_2(t)/2)\mathbf{1} + i \sin((\varphi_2(t)/2)\sigma_{2z}) \cdot (\cos \varphi_I(t)(\mathbf{1} \otimes \mathbf{1}) + i \sin \varphi_I(t)(\sigma_{1z} \otimes \sigma_{2z})). \quad (51)$$

For perturbed density matrix we obtain

$$\rho_{EPR}(t) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & \exp(-i(\varphi_1(t) - \varphi_2(t))) & 0 \\ 0 & \exp(i(\varphi_1(t) - \varphi_2(t))) & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (52)$$

We see that the *modulation of spin-spin interaction has no effect* on density matrix of triplet EPR-state.

Let us assume now that the random phases $\varphi_{1,2}(t)$ have mean value $\langle \varphi_{1,2}(t) \rangle = 0$ and belong to the reduced statistical ensemble, which is described by the *two-dimensional Gaussian distribution*:

$$w(\varphi_1(t), \varphi_2(t)) = \frac{1}{2\pi\sigma_1(t)\sigma_2(t)\sqrt{1-\rho_{12}^2(t)}} \cdot \exp\left\{-\frac{1}{2(1-\rho_{12}^2(t))} \cdot \left(\frac{\varphi_1^2(t)}{\sigma_1^2(t)} - \frac{2\rho_{12}(t)\varphi_1(t)\varphi_2(t)}{\sigma_1(t)\sigma_2(t)} + \frac{\varphi_2^2(t)}{\sigma_2^2(t)}\right)\right\}. \quad (53)$$

Here

$$\sigma_{1,2}^2(t) = \langle \varphi_{1,2}^2(t) \rangle = 2 \int_0^t (t-\tau) f_{1,2}(\tau) d\tau$$

are the variances and

$$\rho_{12}(t) = \frac{\langle \varphi_1(t)\varphi_2(t) \rangle}{\sigma_1(t)\sigma_2(t)} = \frac{2 \int_0^t (t-\tau) f_{12}(\tau) d\tau}{\sigma_1(t)\sigma_2(t)}, \quad (54)$$

where

$$f_{1,2}(\tau) = \langle \Delta\omega_{1,2}(\tau)\Delta\omega_{1,2}(0) \rangle, \quad f_{12}(\tau) = \langle \Delta\omega_1(\tau)\Delta\omega_2(0) \rangle. \quad (55)$$

The normalized mutual correlation function $\rho_{12}(t)$ takes values in interval $0 \leq \rho_{12}(t) \leq 1$.

After averaging (52) with (53) we have

$$\rho_{EPR}(t) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & \exp(-\Gamma(t)) & 0 \\ 0 & \exp(-\Gamma(t)) & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (56)$$

where

$$\begin{aligned} \exp(-\Gamma(t)) &= \int_{-\infty}^{\infty} d\varphi_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\varphi_2 w(\varphi_1, \varphi_2) \exp(\pm i(\varphi_1 - \varphi_2)) = \\ &= \exp\{-(\sigma_1^2(t) - 2\sigma_1(t)\sigma_2(t)\rho_{12}(t) + \sigma_2^2(t))\} \end{aligned} \quad (57)$$

In the absence of random field correlation $\rho_{12}(t) = 0$, the decrement $\Gamma(t)$ is equal to the *sum of decrements of two one qubit states*:

$$\Gamma(t) = (\sigma_1^2(t) + \sigma_2^2(t)) / 2 = 2\Gamma_1(t) \quad (58)$$

In the case of maximum correlation $\rho_{12}(t) = 1$ and $\varphi_1(t) = \varphi_2(t)$ (the same mode acts on both qubits), *adiabatic decoherence disappears*. The singlet EPR state has analogous properties.

We see here that decoherence of interacting qubit states may differ essentially from one qubit decoherence. Under the action of fully correlated random fields the coherence of two mentioned entangled states is not violated and they may be considered as the basis of decoherence-free substrate for logical qubits coding. Clearly, the pure nonfully entangled states $|\psi\rangle = (\sqrt{1-\alpha}|\uparrow\downarrow\rangle + \sqrt{\alpha}|\downarrow\uparrow\rangle)$ have no such properties.

Adiabatic decoherence of other two-qubit fully entangled quantum Bell states $|\psi\rangle = \sqrt{1/2}(|\uparrow\uparrow\rangle \pm |\downarrow\downarrow\rangle)$ under the action of fully correlated random fields with $\rho_{12}(t) = 1$ now does not disappear. Its decrement equals to $\Gamma(t) = (\sigma_1(t) + \sigma_2(t))^2 / 2 = 2\sigma_1^2 = 4\Gamma_1(t)$, that is *four times larger* than for one qubit decoherence.

Conclusion

1. The development of the large-scale ensemble NMR quantum computers has certain advantage over Kane's scheme. It consists in the possibility of

employment of the standard NMR technique for the measurement of quantum states at output of computer, like in the liquid prototype.

2. Methods of dynamic polarization may be proposed for the initialization of nuclear spin states at temperature $T \sim 0.1$ K.
3. Analysis of proposed planar structure of ensemble silicon computer shows the possibility of realization of large-scale NMR quantum computer for ensemble component number $N \sim 10^5$.
4. The main reasons for the internal decoherence of one qubit states are the modulation of resonance qubit frequency due to hyperfine interaction with fluctuating electron spin and due to interaction with randomly distributed impurity diamagnetic atoms containing nuclear spins.
5. Analysis of different feasible ways for obtaining decoherence times large enough shows that the values, needed to perform the required number of quantum logic operations $\sim 10^5$ for large-scaled computations, can be achieved.

Appendix

Semiclassical model of adiabatic decoherence of one-qubit state

We will consider a long-living non-equilibrium qubit state when diagonal elements of density matrix may be treated as a constant.

The random modulation of resonance frequency $\Delta\omega(t)$ that causes the dephasing of a qubit state is determined by the random phase shifts

$$\varphi(t) = \int_0^t \Delta\omega(t) dt. \quad (59)$$

The one-qubit density matrix of pure state in the rotating frame with non-perturbed resonance circular frequency will be

$$\rho(t) = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 + P_z & P_- \exp(i\varphi(t)) \\ P_+ \exp(-i\varphi(t)) & 1 - P_z \end{bmatrix}, \quad (60)$$

where $P_{\pm} = P_x \pm iP_y$, P_x, P_y, P_z are Bloch vector components of length

$$P = \sqrt{P_x^2 + P_y^2 + P_z^2} = 1.$$

By treating the resonance frequency modulation as Gaussian random process after averaging (60) over phase distribution with $\langle \varphi(t) \rangle = 0$ we obtain

$$\langle \rho(t) \rangle = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 + P_z & P_- \exp(-\Gamma(t)) \\ P_+ \exp(-\Gamma(t)) & 1 - P_z \end{bmatrix}, \quad (61)$$

where

$$\Gamma(t) = \frac{1}{2} \left\langle \left(\int_0^t \Delta\omega(t) dt \right)^2 \right\rangle = \int_0^t (t-\tau) \langle \Delta\omega(\tau) \Delta\omega(0) \rangle d\tau \quad (62)$$

$f(t) = \langle \Delta\omega(t) \Delta\omega(0) \rangle$ is the frequency correlation function of a random process, which is characterized by variance $\langle \Delta\omega(0)^2 \rangle$ and correlation time τ_c such that for $t > \tau_c$ $\langle \Delta\omega(t) \Delta\omega(0) \rangle \Rightarrow 0$. For $\Gamma(t) > 0$ the averaged density matrix presents a mixed quantum state with two non-zero eigenstates

$$1/2 \cdot \left(1 \pm \sqrt{1 - (P_x^2 + P_y^2)(1 - \exp(-2\Gamma(t)))} \right) \quad (63)$$

and the populations of states $p_{\pm} = 1/2(1 \pm P_z(0))$ at $\Gamma(t) \Rightarrow \infty$.

Thus, the adiabatic decoherence problem is reduced to the determination of the function $\Gamma(t)$ or the correlation function of random frequency modulation.

In the case of an ensemble quantum register there is a need to average the one-qubit density matrix and correlation function over ensemble of independent equivalent spin-qubits.

References

1. N.A. Gershenfeld, I.L. Chuang. Bulk Spin-Resonance Quantum Computation, *Science*, 1997, vol. 275, pp. 350–356.
2. I.L. Chuang, N. Gershenfeld, M.G. Kubinec, D.W. Leung. Bulk Quantum Computation with Nuclear Magnetic Resonance: Theory and Experiment, *Proc. Roy. Soc. London*, 1998, vol. A454, no. 1969, pp. 447–467.
3. D.G. Cory, M.D. Price, T.F. Havel. Nuclear Magnetic Resonance Spectroscopy: An Experimentally Accessible Paradigm for Quantum Computing, *Physica D*, 1997, vol. 120, no. 1–2, pp. 82–101.
4. D.G. Cory, A.F. Fahmy, T.F. Havel. Ensemble Quantum Computing by NMR Spectroscopy, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA*, 1997, vol. 94, no. 5, pp. 1634–1639.
5. E. Knill, I. Chuang, R. Laflamme. Effective Pure States for Bulk Quantum Computation, *Phys. Rev.*, 1998, vol. A57, no. 5, pp. 3348–3363.
6. A. Abragam. The Principles of Nuclear Magnetism. Oxford, Clarendon Press, 1961.
7. J.A. Jones. NMR Quantum Computation: a Critical Evaluation, *Fortschr. Phys.*, 2000, vol. 48, no 9–11, pp. 909–924.
8. D.P. DiVincenzo. The Physical Implementation of Quantum Computation, *Fortschr. Phys.*, 2000, vol. 48, no 9–11, pp. 771–783.
9. B.E. Kane. A Silicon-Based Nuclear Spin Quantum Computer, *Nature* (London), 1998, vol. 393, pp. 133–137.
10. B.E. Kane. Silicon-based Quantum Computation, *Fortschr. Phys.*, 2000, vol. 48, no 9–11, pp. 1023–1041.

11. J.L. O'Brien, S.R. Schofield, M.Y. Simmons, R.G. Clark, A.S. Dzurak, N.J. Curson, B.E. Kane, N.S. McAlpine, M.E. Hawley, G.W. Brown. Towards the Fabrication of Phosphorus Qubits for a Silicon Quantum Computer, *Phys. Rev.*, 2001, vol. B64, 161401 (R), 5p.
12. T.M. Buehler, R.P. McKinnon, N.T. Lumpkin, R. Brenner, D.J. Really, L.D. Macks, A.R. Hamilton, A.S. Dzurak, R.G. Clark. Self-Aligned Fabrication Process for Quantum Computer Devices, E-print LANL: arXiv:quant-ph/0208374, 2002.
13. K.A. Valiev, A.A. Kokin. Solid-State NMR Quantum Computer with Individual Access to Qubits and Some Their Ensemble Developments, E-print LANL: arXiv:quant-ph/9909008, 1999.
14. K.A. Valiev, A.A. Kokin. Quantum computers: reliance and reality. Second edition, Moscow-Izhevsk: R&C Dynamics, 2002 (in Russian), 320 p.
15. G. Ludwig, and H. Woodbury. Electron Spin Resonance in Semiconductors, New York: Academic Press, 1962.
16. K.A. Valiev. Magnetic Resonance on Nuclei of Paramagnetic Atoms, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 1957, vol. 33, no. 4(10), pp. 1045–1047 (in Russian).
17. A.A. Kokin, K.A. Valiev. Problems in Realization of Large-Scale Ensemble Silicon-based NMR Quantum Computers, *Quantum Computers & Computing*, Moscow-Izhevsk: R&C Dynamics, 2002, vol. 3, no.1, pp. 25-45, E-print LANL: arXiv:quant-ph/0201083.
18. G. Feher, E.A. Gere. Electron Spin Resonance Experiments on Donors in Silicon. II. Electron Spin Relaxation Effects. *Phys. Rev.*, 1959, vol. 114, no. 5, pp. 1245–1256.
19. A. Abragam, M. Goldman. Nuclear Magnetism: Order & Disorder. Oxford: Clarendon Press, 1982.
20. C.J. Wellard, L.C.L. Hollenberg. Stochastic Noise as a Source of Decoherence in a Solid State Quantum Computer, E-print LANL: arXiv:quant-ph/0104055, 2001.
21. A.A. Kokin. Decoherence of Quantum States and its Suppression in Ensemble Large-Scale Solid State NMR Quantum Computers, E-print LANL: arXiv:quant-ph/0211096, 2002; *Proc. SPIE*, 2003, N.5128.

МАГНИТНОЕ ПОЛЕ СВЕРХПРОВОДНИКОВ II РОДА В МОДЕЛИ ВИХРЯ С НОРМАЛЬНОЙ СЕРДЦЕВИНОЙ КОНЕЧНОГО РАДИУСА

А.В. Минкин, С.Л. Царевский

Казанский государственный университет, 420008 Казань

Для сверхпроводника II рода рассматривается модель вихря Абрикосова с нормальной сердцевинной конечного радиуса ($\kappa \neq 1$, κ параметр Гинзбурга-Ландау). На основе квантовомеханического обобщения уравнения Лондонов для сверхпроводящего тока в предположении нормальной сердцевины вихря показано, что уравнения для магнитного поля переходят в обобщенное уравнение Лондонов (с точностью $1/\kappa$). Получены решения этого уравнения для одиночного вихря в бесконечном сверхпроводнике и для решетки вихрей в полубесконечном сверхпроводнике. Показано, что эти решения являются конечными в любой точке пространства и, следовательно, устранение расходимостей происходит автоматически. Модель нормальной сердцевины вихря имеет преимущество перед моделью Клема, поскольку она позволяет более успешно решить краевую задачу для полубесконечного сверхпроводника.

Для интерпретации экспериментальных данных, получаемых при исследовании сверхпроводников II рода различными методами (магнитостатическими, радиоспектроскопическими, нейтронными, мюонными и т.д.), необходимо знать распределение локального магнитного поля $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ решетки вихрей Абрикосова в постоянном магнитном поле $\mathbf{H}$ [1]. Обычно для определения $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ в промежуточной области полей $H_{c1} < H < H_{c2}$ (H_{c1} , H_{c2} – первое и второе критические поля) при $\kappa \neq 1$ (κ – параметр Гинзбурга-Ландау) используется уравнение Лондонов, в котором сердцевина вихря описывается двумерной δ -функцией с особенностью в центре вихря.

Уравнение Лондонов позволяет получить $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ для одиночного вихря в бесконечном сверхпроводнике. Широко используется уравнение Лондонов для решетки вихрей: используя трансляционную симметрию решетки, находят сначала Фурье-компоненты $\mathbf{h}(\mathbf{G})$ магнитного поля ($\mathbf{G}$ – вектор обратной решетки), а затем с помощью ряда Фурье восстанавливают $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ (см. например, [2]). Таким способом найдено решение для полубесконечного анизотропного сверхпроводника и найдено $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ как внутри, так и вне границы сверхпроводника [3]. Однако полученные таким способом решения уравнения Лондонов для полубесконечного анизотропного сверхпроводника имеют недостаток: в центре вихря решения становятся бесконечными. Для одиночного вихря и решетки вихрей безграничного сверхпроводника

возникающую особенность довольно просто устранить путем обрезания решения на расстояниях $\sim \xi$ от центра вихря (ξ – длина когерентности). Для полубесконечного сверхпроводника в поле $\mathbf{H}$, направленном по нормали к поверхности сверхпроводника вблизи границы сверхпроводника, магнитное поле из сильно неоднородного поля вихрей Абрикосова переходит в однородное поле вне сверхпроводника, так что на границе сверхпроводника появляются тангенциальные составляющие магнитного поля. Эта переходная область имеет глубину внутри сверхпроводника $\sim \lambda$ (λ – лондоновская глубина проникновения магнитного поля в сверхпроводник) и вне сверхпроводника $\sim b$ (b – расстояние между вихрями) [3]. Процедура ограничения сингулярного решения в этой области (и, особенно, вне сверхпроводника) становится не совсем ясной; так, например, на границе сверхпроводника при достаточно разряженной решетке вихрей тангенциальные составляющие магнитного поля должны стремиться к нулю в центре вихря (как это следует из соображений симметрии) и не имеют сингулярности вообще. С другой стороны, совершенно понятно, что появление особенностей в решениях уравнения Лондонов связано с тем, что в них считается, что изменение параметра порядка происходит лишь в центре вихря. Если считать, что параметр порядка изменяется на расстоянии $\sim \xi$ от центра вихря, то последовательный учет этого обстоятельства приводит к модификации уравнения Лондонов для $\mathbf{h}(\mathbf{r})$.

Уравнения Гинзбурга-Ландау для магнитного поля $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ сверхпроводников в безразмерных единицах, обычно используемых в теории сверхпроводимости, имеют вид [2]:

$$\text{rot } \mathbf{h} = -f^2 \mathbf{Q}, \quad \mathbf{Q} = \mathbf{A} - \xi \nabla \chi, \quad (1)$$

где $f = \Delta / \Delta'$, Δ – амплитуда параметра порядка, Δ' – амплитуда параметра порядка в отсутствии полей, χ – фаза параметра порядка, $\mathbf{A}$ – векторный потенциал магнитного поля $\mathbf{h}$ ($\mathbf{h} = \text{rot } \mathbf{A}$).

Рассмотрим сначала бесконечный сверхпроводник и найдем решение (1), обладающее цилиндрической симметрией, т.е. найдем поле одиночного вихря. Воспользуемся моделью вихря с нормальной сердцевинкой радиуса ξ . Тогда с точностью до ξ можно положить $f^2 = 0$ внутри сердцевинки и $f^2 \neq 0$ вне сердцевинки. Введем также функцию $g = 1 - f^2$. Пусть сердцевина центрирована вдоль оси Oz , тогда решение (1) зависит от $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ и не зависит от z . Возьмем rot от обеих частей уравнения (1) и, используя функцию g , получим:

$$\mathbf{h} + \text{rot rot } \mathbf{h} = -g \mathbf{h}_n - \delta(\rho - \xi)[\mathbf{e}_\rho, \Delta \mathbf{A}] + \delta(\rho - \xi) \mathbf{e}_z, \quad (2)$$

где $\mathbf{h}_n$ – магнитное поле внутри сердцевинки вихря, а $\Delta \mathbf{A} = \lim_{\rho \rightarrow \xi-0} \mathbf{A} = -\mathbf{A}_n(\xi)$ – скачок функции $g\mathbf{A}$ на окружности $\rho = \xi$, $\mathbf{e}_\rho$, $\mathbf{e}_z$ – орты цилиндрической системы координат. Первые два слагаемых в правой части (1) появились при дифференцировании разрывной функции $g\mathbf{A}$ [4]. Поясним происхождение третьего слагаемого в (2). Отметим, что $\text{rot}(f^2 \nabla \chi)$ равен нулю при $\rho < \xi$ и $\rho > \xi$, но при $\rho = \xi$ имеет особенности, так что при $\rho = \xi$ $\text{rot}(f^2 \nabla \chi)$ следует доопределить, исходя из интегральных соотношений:

$$\begin{aligned} \int_S \text{rot}(f^2 \nabla \chi) d\mathbf{S} &= \\ &= \oint_\Gamma f^2 \nabla \chi d\mathbf{l} = \begin{cases} 2\pi, & \text{если } \Gamma \text{ охватывает сердцевину вихря} \\ 0, & \text{если } \Gamma \text{ внутри сердцевинки вихря.} \end{cases} \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь Γ – контур, ограничивающий произвольную площадку S на плоскости x, y . Соотношение (3) выполняется при любом Γ , если принять $\text{rot}(f^2 \nabla \chi) = \kappa \delta(\rho - \xi) \mathbf{e}_z$. Такое же выражение можно получить, используя правила дифференцирования разрывных функций [4].

Поскольку при получении (1) использовалось приближение по ξ , то вкладом первых двух слагаемых (2) в $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ можно пренебречь. В этом можно убедиться, если перейти к фурье-представлению уравнения (2): интегралы Фурье от первых двух слагаемых можно оценить, используя теорему о среднем. Оценки показывают, что они будут порядка $\xi \ln \kappa$ и $\xi^2 \ln \kappa$ от первого и второго слагаемого соответственно.

Итак, модифицированное уравнение Лондонов для $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ вихря с сердцевинкой радиуса ξ имеет вид:

$$\mathbf{h} + \text{rot rot } \mathbf{h} = \frac{1}{\kappa \xi} \delta(\rho - \xi) \mathbf{e}_z. \quad (4)$$

В случае решетки вихрей f^2 и g – периодические функции решетки, так что в правой части (2) вместо $\delta(\rho - \xi)$ появятся суммы δ -функций с особенностями на окружностях радиуса ξ , центрированных на вихрях:

$$\mathbf{h} + \text{rot rot } \mathbf{h} = \sum_v \frac{1}{\kappa \xi} \delta(|\mathbf{p} - \mathbf{p}_v| - \xi) \mathbf{e}_z. \quad (5)$$

Представляя решение рядом Фурье по векторам $\mathbf{G}$ обратной решетки, легко убедиться, что вкладами от нормальной части вихрей можно снова пренебречь. Уравнение (4) сохраняет свой вид и для полубесконечного сверхпроводника при $\mathbf{H}$, направленном по нормали к поверхности

сверхпроводника, т.к. f в этом случае остается прежней [2], а оценки вкладов отбрасываемых членов имеют тот же порядок.

Приведем некоторые решения уравнения (4).

1. Одиночный вихрь в безграничном сверхпроводнике $h(0,0,h)$

Фурье-компонента магнитного поля в этом случае запишется как

$$h_k = \frac{J_0(k\xi)}{2\pi\kappa(1+k^2)},$$

где $J_0(x)$ – функция Бесселя нулевого порядка. Отсюда $h(\rho)$:

$$h(\rho) = \begin{cases} \xi I_0(\rho) K_0(\xi) \cong \xi K_0(\xi), & 0 < \rho < \xi, \\ \xi I_0(\xi) K_0(\rho) \cong \xi K_0(\rho), & 0 < \xi < \rho. \end{cases} \quad (6)$$

Здесь $I_0(x)$, $K_0(x)$ – модифицированные функции Бесселя нулевого порядка. Решение (6) правильно описывает поведение $h(\rho)$ как вне, так и внутри сердцевин вихря. Результат сравнения зависимостей $h(\rho)$, описываемых модифицированным и немодифицированным уравнением Лондонов, представлен на рис. 1.

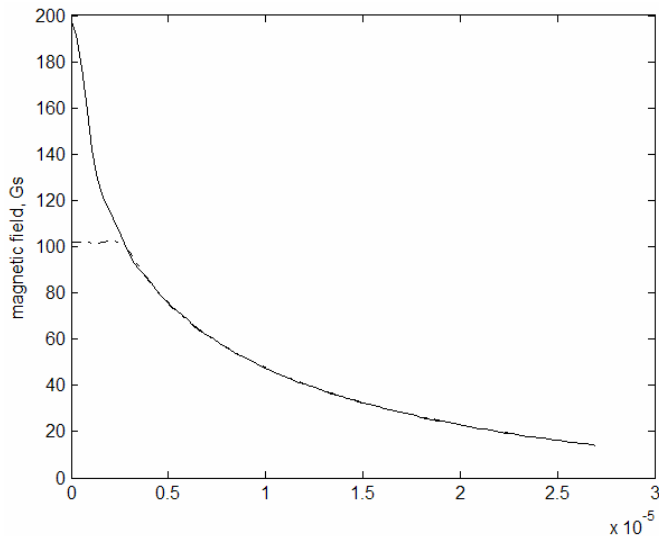


Рис. 1. Зависимость величины магнитного поля h от расстояния ρ (ρ измеряется в см). Сплошная линия на рисунке соответствует распределению $h(\rho)$ с $\xi = 0$, а штрих-пунктирная линия соответствует распределению $h(\rho)$ с $\xi = 0.1\lambda$ ($\lambda = 2700 \text{ \AA}$).

2. Решетка вихрей в сверхпроводнике, занимающем полупространство $z \geq 0$

Для Фурье-компонент $\mathbf{h}(\mathbf{G}, z)$ из (5) имеем:

$$\begin{aligned} -\frac{d^2 \mathbf{h}(\mathbf{G}, z)}{dz^2} + (1 + G^2) \mathbf{h}(\mathbf{G}, z) &= \frac{2\pi}{\kappa S_0} J_0(G\xi) \mathbf{e}_z, \\ iG_x h_x(\mathbf{G}, z) + iG_y h_y(\mathbf{G}, z) + \frac{d^2 h_z(\mathbf{G}, z)}{dz^2} &= 0, \quad z \geq 0, \\ -G^2 \Psi(\mathbf{G}, z) + \frac{d^2 \Psi(\mathbf{G}, z)}{dz^2} &= 0, \quad \mathbf{h} = -\nabla \Psi, \quad z < 0. \end{aligned} \quad (7)$$

Решение уравнения (7) с учетом стандартных граничных условий для магнитного поля на границе сверхпроводник–вакуум имеет вид:

а) $\mathbf{h}(\mathbf{G}, z)$ внутри сверхпроводника ($z \geq 0$):

$$\begin{aligned} h_x(\mathbf{G}, z) &= i \frac{G_x dh_0}{G} \exp(-\sqrt{1 + G^2} z), \\ h_y(\mathbf{G}, z) &= i \frac{G_y dh_0}{G} \exp(-\sqrt{1 + G^2} z), \\ h_z(\mathbf{G}, z) &= \left[1 - \frac{Gd}{\sqrt{1 + G^2}} \exp(-\sqrt{1 + G^2} z) \right] h_0; \end{aligned} \quad (8)$$

б) $\mathbf{h}(\mathbf{G}, z)$ вне сверхпроводника ($z < 0$):

$$\begin{aligned} h_x(\mathbf{G}, z) &= i \frac{G_x dh_0}{G} \exp(Gz), \\ h_y(\mathbf{G}, z) &= i \frac{G_y dh_0}{G} \exp(Gz), \\ h_z(\mathbf{G}, z) &= dh_0 \exp(Gz), \end{aligned} \quad (9)$$

$$h_0 = \frac{2\pi}{\kappa S_0} \frac{1}{1 + G^2} J_0(\xi G), \quad (10)$$

$$d = \frac{\sqrt{1 + G^2}}{G + \sqrt{1 + G^2}},$$

где S_0 – площадь ячейки Браве вихревой решетки. При $z \rightarrow -\infty$ $h = H$, $H = 2\pi/(\xi S_0)$ ($= \Phi_0/S$ – в размерных единицах). Решение (8),(9) переходит в решение уравнения Лондонов, в правой части которых стоят δ -функции с особенностями на центрах вихрей, если положить в (10) $J_0(\xi G) = 1$. Отсюда видно, что появление множителя $J_0(\xi G)$ при больших G улучшает асимптотику h_0 . Это приводит к сходимости ряда Фурье, представляющего

h(r). Модифицированное уравнение Лондонов (5) более точно описывает магнитное поле вихревой решетки в широком интервале полей H ($H_{c1} < H < H_{c2}$). Отметим, наконец, что уравнение (5) можно обобщить и для описания **h(r)** в анизотропных сверхпроводниках. Так, для одноосного анизотропного сверхпроводника в случае, если вихри направлены вдоль оси анизотропии $0z$, уравнение для локального магнитного поля **h(r)** примет вид:

$$\mathbf{h} + m_{ij} \operatorname{rot}_i \mathbf{h} \operatorname{rot}_j \mathbf{h} = \frac{1}{\kappa \xi} \sum_v \delta(|\mathbf{p} - \mathbf{p}_v| - \xi) \mathbf{e}_z, \quad (11)$$

где m_{ij} – тензор масс.

С помощью уравнения (11) также можно описать состояние высокотемпературного сверхпроводника (ВТСП), при котором вихри Абрикосова образуют нерегулярную вихревую структуру. Такое состояние ВТСП приводит к ряду особенностей, например: к немонотонной зависимости критического тока $J_c(H)$, “fishtail” эффекту [5], электрической бистабильности [6], изменению характера поглощения микроволновой энергии [7] и т.д.

В качестве первого шага для нахождения поля **h(r)** в нерегулярной решетке вихрей Абрикосова найдем распределение **h(r)** для случая, когда один из вихрей вихревой решетки, первоначально центрированный в начале координат, смещен в некоторую точку **a** от начала координат. Если $|\mathbf{a}| \ll \lambda$, то $\delta(|\mathbf{p} - \mathbf{a}| - \xi)$ можно разложить в ряд Тейлора по вектору **a**. Ограничиваясь линейными по **a** членами разложения, получим:

$$\delta(|\mathbf{p} - \mathbf{a}| - \xi) = \delta(|\mathbf{p}| - \xi) - \frac{\partial \delta(\rho - \xi)}{\partial \rho} \frac{(\mathbf{p} \cdot \mathbf{a})}{\rho} + \dots \quad (12)$$

При подстановке (12) в (11) заметим, что первый член разложения в (12) войдет в сумму, определяющую магнитное поле регулярной решетки вихрей, а второй член разложения будет определять искажение регулярной решетки. В силу линейности уравнений (11) **h(r)** можно представить в виде:

$$\mathbf{h}(\mathbf{r}) = \mathbf{h}_{\text{reg}}(\mathbf{r}) + \tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{r}), \quad (13)$$

где $\mathbf{h}_{\text{reg}}(\mathbf{r})$ – магнитное поле регулярной решетки вихрей, $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{r})$ – возмущение магнитного поля, вызванного смещением одного вихря из точки (0,0) в точку $\mathbf{a}(a_x, a_y)$. Решение для $\mathbf{h}_{\text{reg}}(\mathbf{r})$ находим аналогично (7) – (9), как и в случае изотропного сверхпроводника. Поэтому остается только найти решение для $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{r})$.

Отметим, что $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{r})$ уже не обладает трансляционной симметрией решетки вихрей, поэтому $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{r})$ следует представить интегралом Фурье в плоскости (x, y) . По аналогии с (7) – (9) для фурье-компонент $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{k}, z)$ имеем:

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2 \tilde{h}_x(\mathbf{k}, z)}{\partial z^2} - q^2 \tilde{h}_x(\mathbf{k}, z) &= i \frac{m_1 - m_3}{m_1} k_x \frac{\partial \tilde{h}_z(\mathbf{k}, z)}{\partial z}, \\ \frac{\partial^2 \tilde{h}_y(\mathbf{k}, z)}{\partial z^2} - q^2 \tilde{h}_y(\mathbf{k}, z) &= i \frac{m_1 - m_3}{m_1} k_y \frac{\partial \tilde{h}_z(\mathbf{k}, z)}{\partial z}, \\ \frac{\partial^2 \tilde{h}_z(\mathbf{k}, z)}{\partial z^2} - q_1^2 \tilde{h}_z(\mathbf{k}, z) &= -\frac{\varphi}{m_1}, \\ q^2 &= \frac{1}{m_1} + \frac{m_3}{m_1} k^2, \quad q_1^2 = \frac{1}{m_1} + k^2, \\ \varphi &= i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{a}) J_0(k\xi),\end{aligned}\tag{14}$$

где $m_1 = m_{xx} = m_{yy}$ и $m_3 = m_{zz}$ – главные значения тензора масс в базисных осях кристалла.

Решение уравнений (14) с учетом стандартных граничных условий для магнитного поля на границе сверхпроводник–вакуум имеет вид:

а) $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{k}, z)$ внутри сверхпроводника ($z \leq 0$):

$$\begin{aligned}\tilde{h}_x(\mathbf{k}, z) &= -i \frac{k_x \varphi}{k d_1} \exp(q_1 z), \\ \tilde{h}_y(\mathbf{k}, z) &= -i \frac{k_y \varphi}{k d_1} \exp(q_1 z), \\ \tilde{h}_z(\mathbf{k}, z) &= \frac{1}{m_1 q_1^2} - \frac{k \varphi}{q_1 d_1} \exp(q_1 z);\end{aligned}$$

б) $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{k}, z)$ вне сверхпроводника ($z > 0$):

$$\begin{aligned}\tilde{h}_x(\mathbf{k}, z) &= -i \frac{k_x \varphi}{k d_1} \exp(-kz), \\ \tilde{h}_y(\mathbf{k}, z) &= -i \frac{k_y \varphi}{k d_1} \exp(-kz), \\ \tilde{h}_z(\mathbf{k}, z) &= \frac{1}{d_1} \exp(-kz),\end{aligned}$$

где $d_1 = m_1 q_1 (k + q_1)$.

Для нахождения $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{r})$ необходимо выполнить обратное преобразование Фурье, т.е. вычислить двумерный интеграл Фурье. С вычислительной точки зрения это означает нахождение интегральной суммы, т.е. представления искомой функции в виде периодической функции, обладающей трансляционной симметрией двумерной решетки с достаточно большим периодом. Следовательно для вычисления $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{r})$ можно воспользоваться процедурой быстрого преобразования Фурье (БПФ) с периодом большим, чем период регулярной вихревой решетки. Подставляя найденное распределение $\tilde{\mathbf{h}}(\mathbf{r})$ и $\mathbf{h}_{\text{рег}}(\mathbf{r})$ (которое, повторяем, легко находится по аналогии с (7) – (9)) в (13) найдем $\mathbf{h}(\mathbf{r})$. Магнитное поле возьмем $H=2$, которое значительно превышает H_{c1} , а отношение масс выберем $\Gamma = m_3/m_1 = 25$, которое отражает анизотропию высокотемпературного сверхпроводника $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ с $T_c = 90$ К [8].

На рис. 2 и 3 представлены карты распределения магнитного поля $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ в элементарной ячейке вихревой решетки со смещенным и несмещенным центром сердцевинки вихря на глубине $z = -5$ (внутри сверхпроводника). Величина смещения $a = 0.01$ (напомним, что a , ξ и z измеряются в единицах λ). Элементарная ячейка вихревой решетки разбивается на 256×256 точек, в которых вычисляется $\mathbf{h}(\mathbf{r})$.

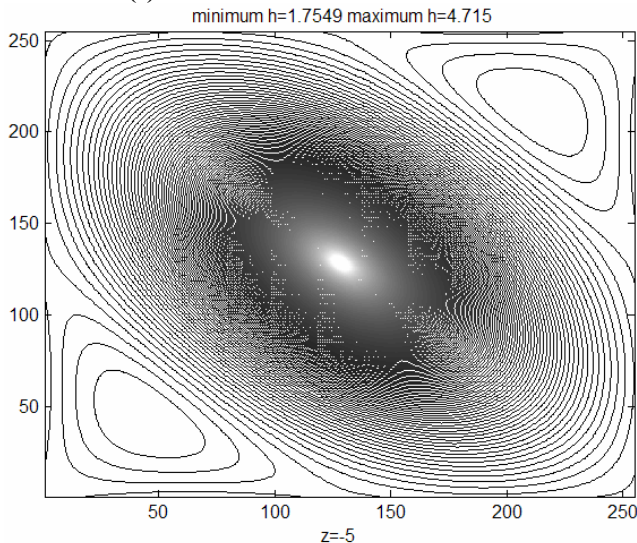


Рис. 2. Карта распределения магнитного поля $h(\mathbf{r})$ внутри сверхпроводника ($z = -5$) с не смещенным центром вихря радиуса $\xi = 0.01$. Контурные линии нарисованы в неортогональной системе отсчета [3].

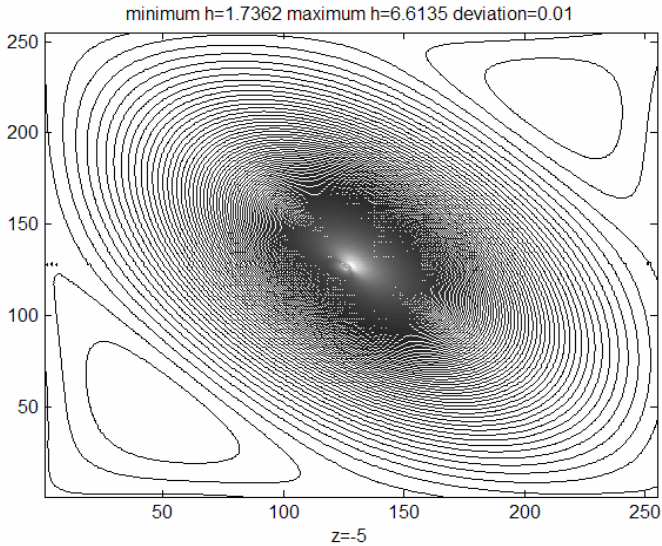


Рис. 3. Карта распределения магнитного поля $h(r)$ внутри сверхпроводника ($z=-5$) со смещенным центром вихря радиуса $\xi=0.01$. Смещение $a=0.01$. Контурные линии нарисованы в неортогональной системе отсчета [3].

На рисунках видно, что смещение одного вихря в регулярной решетке приводит к изменению распределения магнитного поля $\mathbf{h}(\mathbf{r})$. Это выражается также и в том, что изменяется максимальное и минимальное значение поля в элементарной ячейке. Учет таких изменений для всего пространства сверхпроводника может значительно изменить картину распределения магнитного поля $\mathbf{h}(\mathbf{r})$ сверхпроводника [9], что позволит построить форму линии магнитного резонанса с учетом неоднородного уширения, вызванного искажениями регулярной решетки вихрей сверхпроводника.

В заключение авторы пользуются приятной возможностью поблагодарить Бориса Ивановича Кочелаева за внимание и многочисленные обсуждения рассматриваемых в данной работе вопросов.

Работа выполнена при поддержке гранта CRDF (REC-007).

Литература

1. Ю.М. Белоусов, В.М. Горбунов, В.П. Смилга, И.В. Фесенко, УФН **160**, 55 (1990).
2. Д. Сан Жам, Г. Сарма, Е. Томас. Сверхпроводимость второго рода. Мир. М. 1970.
3. Б.И. Кочелаев, Е.П. Шарин. СФХТ **5**, 11, 1982 (1992).

4. И.М. Гельфанд, Г.Е. Шилов. Обобщенные функции и действия над ними. ФМ. М. 1959.
5. H. K pfer *et al.*, Phys. Rev. B **58**, 2886 (1998)
6. A. Gurevich and V.M. Vinokur. Phys. Rev. Lett. **83**, 3037 (1999).
7. T. Shaposhnikova, Yu. Talanov, Yu. Vashakidze. Physica C **385**, 383 (2003).
8. С.А. Ефремова, С.Л. Царевский. ФТТ **39**, 11, 1935 (1997).
9. А.В. Минкин, С.Л. Царевский. ФТТ **46**, 3, 410 (2004).

MAGNETIC FIELD OF TYPE II SUPERCONDUCTORS IN THE NORMAL FLUX CORE MODEL

A.V.Minkin, S.L.Tsarevskii
Kazan State University, 420008 Kazan, Russia

The model of the normal flux core of the Abrikosov's vortex in a type II superconductor is used ($\kappa \gg 1$, κ is the Ginzburg-Landau parameter). It is shown, that on the basis of the quantum-mechanical generalization of the London's equation for the superconducting current with the supposition of the normal flux core the equations for the magnetic field rearrange to the form of generalized London's equation (with an accuracy $1/\kappa$). Solutions of generalized London's equation are obtained for a single vortex in infinite superconductor and for the vortex lattice in a semi-infinite superconductor. It is shown, that these solutions are finite in any point of the space and that the removal of divergences is getting automatically. The normal flux core model offers an advantage over the Clem's model, so that it allows to solve the boundary-value problem more successfully for the vortex lattice of the superconducting semispace.

РЕШЕНИЕ V - U - V МОДЕЛИ ХАББАРДА В ПРИБЛИЖЕНИИ СТАТИЧЕСКИХ ФЛУКТУАЦИЙ

Г.И. Миронов

Марийский государственный педагогический институт, Йошкар-Ола

Приведены решения модели Хаббарда, содержащей два узла кристаллической решетки, и двухмерной модели Хаббарда с учетом кулоновского взаимодействия электронов, находящихся на соседних узлах кристаллической решетки в приближении статических флуктуаций. Полученные результаты сравниваются с точным решением для димера.

В последнее время особенное внимание уделяется исследованию сильно коррелированных электронных систем, которые могут быть описаны в рамках модели Хаббарда [1], модели Эмери [2] или других моделей (см., например, [2-9]).

Модель Хаббарда до настоящего времени продолжает исследоваться различными методами. Были получены фундаментальные результаты о природе основного состояния, элементарных возбуждений, построены фазовые диаграммы. В работах [10-12] было разработано решение модели Хаббарда в приближении статических флуктуаций с введением для фермиевских операторов «представления типа представления взаимодействия». Было показано, что в рамках выбранного приближения основное состояние системы является при точно наполовину заполненной зоне антиферромагнитным. В [12] была вычислена энергия основного состояния в случае бипартитной двухмерной модели Хаббарда, а также в частном случае получено выражение для энергии основного состояния одномерной модели Хаббарда, для которой известно точное решение [13,14], полученное с применением метода Бете [15]. Сравнение этих результатов показало, что в случаях слабой и сильной связей энергии основного состояния практически одинаковы, в случае промежуточных корреляций выражения для энергий совпадали с точностью порядка 18%. Все это позволяет надеяться, что приближение статических флуктуаций в пределах сильной и слабой корреляций может адекватно описывать поведение модели Хаббарда. Для того, чтобы удостовериться в этом, необходимо сравнение с другими точными решениями. В [16] было получено точное решение для димера (двух узлов кристаллической решетки, помещенных в термостат). Было получено аналогичное решение в приближении статических флуктуаций, сравнение точного и приближенного вычислений показало, что выбранное приближение приводит к одинаковым с точным решением результатам. Однако в [16] не учитывалось межузельное кулоновское отталкивание электронов. Целью

настоящей работы является исследование модели Хаббарда с учетом кулоновского взаимодействия электронов, находящихся как на одном узле кристаллической решетки, так и на соседних узлах.

1. Точное решение двухузельной модели Хаббарда

В термостат поместим два узла кристаллической решетки, взаимодействие между узлами будем описывать гамильтонианом Хаббарда, явный вид гамильтониана, описывающего взаимодействие между узлами кристаллической решетки и термостатом, выписывать не будем. Гамильтониан системы с учетом межузельного кулоновского взаимодействия электронов соседних узлов запишем в виде ($i, j=1, 2$):

$$H = \varepsilon \sum_{i, \sigma} n_{i\sigma} + B \sum_{i \neq j, \sigma} a_{i\sigma}^+ a_{j\sigma} + \frac{U}{2} \sum_{i, \sigma} n_{i\sigma} n_{i\bar{\sigma}} + \frac{V}{2} \sum_{i \neq j, \sigma} n_{i\sigma} n_{j\bar{\sigma}}, \quad (1)$$

здесь ε – собственная энергия электрона; U, V – энергии кулоновского взаимодействия электронов на одном узле и на двух соседних узлах с разными проекциями спинов, соответственно; B – интеграл переноса, описывающий перескоки электронов с узла i на узел j за счет тепловых флуктуаций и энергии кристаллического поля; $n_{i\sigma} = a_{i\sigma}^+ a_{i\sigma}$ – оператор числа частиц на узле i решетки со спином σ , $\bar{\sigma} = -\sigma$; $a_{i\sigma}^+, a_{i\sigma}$ – операторы рождения и уничтожения электронов на узле решетки i со спином σ .

Уравнение движения для оператора $a_{i\sigma}^+(\tau)$ в представлении Гейзенберга ($\tau = it$) имеет вид:

$$\frac{d}{d\tau} a_{i\sigma}^+(\tau) = \varepsilon a_{i\sigma}^+(\tau) + U n_{i\bar{\sigma}} a_{i\sigma}^+(\tau) + V n_{j\bar{\sigma}} a_{i\sigma}^+(\tau) + B a_{j\sigma}^+(\tau), \quad (2)$$

здесь $i \neq j$; $i, j=1, 2$.

Написав уравнения движения для вновь появившихся в уравнении (2) операторов, мы получим систему 24 связанных дифференциальных уравнений. Ввиду громоздкости ни сами дифференциальные уравнения, ни решения системы дифференциальных уравнений выписывать не будем. (Решение этих уравнений в частном случае $V=0$ приведено в [16]). Используя полученные решения, можно вычислить антикоммутаторные функции Грина и их фурье-образы. Можно, например, получить, что:

$$\left\langle \left\langle a_{i\sigma}^+ \middle| a_{i\sigma} \right\rangle \right\rangle_E = -\frac{i}{2\pi} \sum_l \frac{K_l}{E - \varepsilon_l}, \quad (3)$$

где введены следующие обозначения для корреляционных функций и значений энергий:

$$K_{1,2} = \frac{1}{2} \{1 - \langle n_{i\sigma} \rangle - 2 \langle n_{i\bar{\sigma}} \rangle + X_1 + X_2 + X_{32} - X_{42} \pm Y_{11} \mp Y_{21} \mp Y_{31} \pm Y_{41}\},$$

$$K_{3,4} = \frac{1}{2} \{\langle n_{i\sigma} \rangle - X_1 - X_2 + X_{42} \mp Y_{11} \pm Y_{21} \pm Y_{31} \mp Y_{41}\},$$

$$K_{5,6} = \frac{1}{4} \{\langle n_{i\bar{\sigma}} \rangle - X_2 - X_{32} + X_{42} \mp Y_{12} \pm Y_{22} \pm Y_{31} \mp Y_{41} + Z_1\},$$

$$K_{7,8} = \frac{1}{4} \{\langle n_{i\bar{\sigma}} \rangle - X_1 - X_{32} + X_{42} \mp Y_{12} \pm Y_{21} \pm Y_{32} \mp Y_{41} + Z_2\}$$

$$K_{9,10} = \frac{1}{4} \{X_1 - X_{42} \mp Y_{21} \pm Y_{22} \pm Y_{41} + Z_1\},$$

$$K_{11,12} = \frac{1}{4} \{X_2 - X_{42} \mp Y_{31} \pm Y_{32} \pm Y_{41} + Z_2\},$$

$$K_{13,14} = \frac{1}{2} \{X_{32} - X_{42} \pm Y_{41}\}, \quad K_{15,16} = \frac{1}{2} \{X_{42} \mp Y_{41}\},$$

$$K_{17} = \frac{1}{8\gamma} \left\{ \frac{U-V}{2} L_1 + (\gamma + 2B) L_2 \right\}, \quad K_{18} = \frac{1}{8\gamma} \left\{ \frac{U-V}{2} L_3 + (\gamma - 2B) L_4 \right\},$$

$$K_{19} = -\frac{1}{8\gamma} \left\{ \frac{U-V}{2} L_1 + (\gamma - 2B) L_2 \right\}, \quad K_{20} = -\frac{1}{8\gamma} \left\{ \frac{U-V}{2} L_3 + (\gamma + 2B) L_4 \right\},$$

$$K_{21} = \frac{1}{8\gamma} \left\{ -\frac{U-V}{2} L_1 + (\gamma + 2B) L_5 \right\}, \quad K_{22} = \frac{1}{8\gamma} \left\{ -\frac{U-V}{2} L_3 + (\gamma - 2B) L_6 \right\}$$

$$K_{23} = \frac{1}{8\gamma} \left\{ \frac{U-V}{2} L_1 - (\gamma - 2B) L_5 \right\}, \quad K_{24} = \frac{1}{8\gamma} \left\{ \frac{U-V}{2} L_3 - (\gamma + 2B) L_6 \right\},$$

$$L_{1,3} = -X_1 + X_2 \pm Y_{21} \pm Y_{22} \mp Y_{31} \mp Y_{32} + Z_1 - Z_2,$$

$$L_{2,4} = 2 \langle n_{i\bar{\sigma}} \rangle - X_1 - X_2 - 2X_{32} + 2X_{42} \pm$$

$$\pm 2Y_{12} \pm Y_{21} \mp Y_{22} \pm Y_{31} \mp Y_{32} \mp 2Y_{41} - Z_1 - Z_2,$$

$$L_{5,6} = X_1 + X_2 - 2X_{42} \mp Y_{21} \mp Y_{22} \mp Y_{31} \mp Y_{32} \pm 2Y_{41} - Z_1 - Z_2,$$

$$X_1 = \langle n_{i\sigma} n_{j\sigma} \rangle, \quad X_2 = \langle n_{i\sigma} n_{i\bar{\sigma}} \rangle, \quad X_{31} = \langle n_{i\sigma} n_{j\sigma} \rangle, \quad X_{32} = \langle n_{i\sigma} n_{j\bar{\sigma}} \rangle,$$

$$X_{41} = \langle n_{j\sigma} n_{j\bar{\sigma}} n_{i\sigma} \rangle, \quad X_{42} = \langle n_{j\bar{\sigma}} n_{j\sigma} n_{i\bar{\sigma}} \rangle, \quad X_5 = \langle n_{j\sigma} n_{j\sigma} n_{i\sigma} n_{i\sigma} \rangle,$$

$$Y_{11} = \langle a_{j\sigma}^+ a_{i\sigma} \rangle, \quad Y_{12} = \langle a_{j\sigma}^+ a_{i\bar{\sigma}} \rangle, \quad Y_{21} = \langle n_{j\bar{\sigma}} a_{j\sigma}^+ a_{i\sigma} \rangle, \quad Y_{22} = \langle n_{j\sigma} a_{j\sigma}^+ a_{i\bar{\sigma}} \rangle,$$

$$Y_{31} = \langle n_{i\sigma} a_{j\sigma}^+ a_{i\sigma} \rangle, \quad Y_{32} = \langle n_{i\sigma} a_{j\bar{\sigma}}^+ a_{i\bar{\sigma}} \rangle, \quad Y_{41} = \langle n_{j\bar{\sigma}} a_{j\sigma}^+ n_{i\bar{\sigma}} a_{i\sigma} \rangle,$$

Решение В-U-V модели Хаббарда в приближении статических флуктуаций.

$$\begin{aligned}
 Y_{42} &= \langle n_{j\sigma} a_{j\sigma}^+ n_{i\sigma} a_{i\sigma}^- \rangle, Z_1 = \langle a_{j\sigma}^+ a_{j\sigma}^- a_{i\sigma}^+ a_{i\sigma}^- \rangle, Z_2 = a_{j\sigma}^+ a_{j\sigma}^- a_{i\sigma}^- a_{i\sigma}^+ \cdot \\
 \varepsilon_{1,2} &= \varepsilon \pm B, \quad \varepsilon_{3,4} = \varepsilon \pm B, \quad \varepsilon_{5,6} = \varepsilon + V \pm B, \quad \varepsilon_{7,8} = \varepsilon + U \pm B, \\
 \varepsilon_{9,10} &= \varepsilon + U \pm B, \quad \varepsilon_{11,12} = \varepsilon + V \pm B, \quad \varepsilon_{13,14} = \varepsilon + U + V \pm B, \\
 \varepsilon_{15,16} &= \varepsilon + U + V \pm B, \quad \varepsilon_{17,18} = \varepsilon + \frac{U+V}{2} + \gamma \mp B, \\
 \varepsilon_{19,20} &= \varepsilon + \frac{U+V}{2} - \gamma \mp B, \quad \varepsilon_{21,22} = \varepsilon + \frac{U+V}{2} + \gamma \mp B, \\
 \varepsilon_{23,24} &= \varepsilon + \frac{U+V}{2} - \gamma \mp B, \quad \gamma = \sqrt{\left(\frac{U-V}{2}\right)^2 + 4B^2}
 \end{aligned}$$

верхний знак в приведенных выше выражениях соответствует первому индексу, нижний – второму.

Полуса функции Грина (3) определяют возможный энергетический спектр системы – всего мы имеем 24 корня с ε_1 по ε_{24} , некоторые энергетические уровни являются вырожденными. Для того, чтобы установить какие корни соответствуют полюсам функции Грина, необходимо вычислить значения числителей соответствующих дробей, которые определяют «емкости» энергетических уровней (вероятности пребывания электронов на соответствующих уровнях энергии). Для того, чтобы вычислить значения термодинамических средних (корреляционных функций) в (3) необходимо с помощью флуктуационно-диссипационной теоремы [17] от функций Грина перейти к термодинамическим средним, написать соответствующее количество уравнений и решить эту систему уравнений. Нас интересует случай, когда на каждый узел кристаллической решетки приходится один электрон.

Решение системы уравнений для корреляционных функций при температуре $T = 0$ и концентрации $n = \langle n_{i\uparrow} \rangle + \langle n_{i\downarrow} \rangle = 1$ приводит к следующим результатам ($U > B, V$):

$$\varepsilon = -(U+V)/2,$$

$$\begin{aligned}
 \langle n_{i\sigma} \rangle &= 1/2, \quad \langle n_{i\sigma}^- \rangle = 1/2, \quad X_1 = \langle n_{i\sigma}^- n_{j\sigma} \rangle = 1/2, \quad X_2 = \langle n_{i\sigma}^- n_{i\sigma}^- \rangle = 0, \\
 X_{31} &= \langle n_{i\sigma} n_{j\sigma} \rangle = 0, \quad X_{32} = \langle n_{i\sigma}^- n_{j\sigma}^- \rangle = 0, \quad X_{41} = \langle n_{j\sigma} n_{j\sigma}^- n_{i\sigma} \rangle = 0, \\
 X_{42} &= \langle n_{j\sigma}^- n_{j\sigma} n_{i\sigma}^- \rangle = 0, \quad X_5 = \langle n_{j\sigma}^- n_{j\sigma} n_{i\sigma}^- n_{i\sigma} \rangle = 0, \\
 Y_{11} &= \langle a_{j\sigma}^+ a_{i\sigma} \rangle = 0, \quad Y_{12} = \langle a_{j\sigma}^+ a_{i\sigma}^- \rangle = 0, \\
 Y_{21} &= \langle n_{j\sigma}^- a_{j\sigma}^+ a_{i\sigma} \rangle = 0, \quad Y_{22} = \langle n_{j\sigma}^- a_{j\sigma}^+ a_{i\sigma}^- \rangle = 0,
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 Y_{31} &= \langle n_{i\sigma} a_{j\sigma}^+ a_{i\sigma} \rangle = 0, Y_{32} = \langle n_{i\sigma} a_{j\bar{\sigma}}^+ a_{i\bar{\sigma}} \rangle = 0, \\
 Y_{41} &= \langle n_{j\sigma} a_{j\sigma}^+ n_{i\sigma} a_{i\sigma} \rangle = 0, Y_{42} = \langle n_{j\sigma} a_{j\sigma}^+ n_{i\sigma} a_{i\bar{\sigma}} \rangle = 0, \\
 Z_1 &= \langle a_{j\sigma}^+ a_{j\sigma} a_{i\sigma}^+ a_{i\sigma} \rangle = 1/2, Z_2 = \langle a_{j\sigma}^+ a_{j\sigma} a_{i\bar{\sigma}}^+ a_{i\sigma} \rangle = 0.
 \end{aligned}$$

Особо отметим, что $\langle a_{j\sigma}^+ a_{j\bar{\sigma}} a_{i\bar{\sigma}}^+ a_{i\sigma} \rangle = 1/2$ – вероятность взаимного перехода электронов с противоположными ориентациями проекций спинов с одного узла на другой равна 1/2. Оказывается, что хотя мы в гамильтониане (1) не учитываем парные перескоки, они возникают при точном решении. Таким образом, понижение энергии основного состояния системы, описываемой гамильтонианом Хаббарда, происходит не только за счет косвенного обмена (суперобмена) (см. например, [17], стр. 36), когда электрон под действием гамильтониана, описывающего перескоки, переходит на соседний центр, а затем под действием того же гамильтониана возвращается обратно, но и за счет парного перескока. Как и в случае косвенного обмена, при парном перескоке понижение энергии основного состояния обусловлено выигрышем в энергии за счет дополнительной делокализации электронов. По-видимому, именно парные перескоки в случае димера имеют определяющее значение при формировании структуры основного состояния. Также отметим, что $\langle n_{1\sigma} n_{2\bar{\sigma}} \rangle = \langle n_{1\bar{\sigma}} n_{2\sigma} \rangle = 1/2$ – основное состояние димера является антиферромагнитным. При этом, если ввести понятие среднего значения проекции спина S (см., например, формулы (9)–(12)), то оказывается, что на каждом узле димера $S = 0$ ($\langle n_{i\sigma} \rangle = \langle n_{i\bar{\sigma}} \rangle = 1/2$).

Функция Грина (3) при этом принимает вид:

$$\begin{aligned}
 \langle\langle a_{i\sigma}^+ | a_{i\sigma} \rangle\rangle_E &= \frac{i}{2\pi} \frac{1/4}{E + \frac{U}{2} - \frac{V}{2} - B} + \frac{i}{2\pi} \frac{1/4}{E + \frac{U}{2} - \frac{V}{2} + B} + \\
 &+ \frac{i}{2\pi} \frac{1/4}{E - \frac{U}{2} + \frac{V}{2} - B} + \frac{i}{2\pi} \frac{1/4}{E - \frac{U}{2} + \frac{V}{2} + B}.
 \end{aligned} \tag{4}$$

Таким образом, «емкости» лишь четырех энергетических уровней из двадцати четырех не равны нулю. Полюса функции Грина (4) определяют энергетический спектр системы:

$$E_{1-4} = \pm(U - V)/2 \pm B. \tag{5}$$

В случае заполнения двух узлов двумя электронами в энергетическом спектре имеются всего четыре одноэлектронных уровня: два верхних и два нижних, разделенных энергией $U - V$, вероятность их заполнения равна 1/4.

Решение B-U-V модели Хаббарда в приближении статических флуктуаций.

Учет кулоновского взаимодействия электронов, находящихся на разных узлах кристаллической решетки, приводит к перенормировке кулоновской энергии взаимодействия электронов, находящихся на одной орбитали, и к перенормировке химпотенциала. Основное состояние системы оказалось антиферромагнитным, что соответствует теореме Либ-Маттиса [19].

Отметим, что спектр димера (5) несколько отличается от полученных ранее результатов (см., например, [20,21]). Дело, по-видимому, в том, в работах [20,21] ограничиваются диагонализацией матрицы энергии размером 6×6 , при этом пренебрегают многими процессами, происходящими в системе, описываемой гамильтонианом (1), например, процессом взаимного перехода электронов с противоположными ориентациями спинов с одного узла на другой – парными перескоками. При точной диагонализации нами учтены все эти процессы, при этом получается матрица энергии 24×24 (если в гамильтониане (1) для сравнения с работами [20,21] положить $V = 0$, то матрица энергии получается размерности 22×22).

Полученный результат для энергетического спектра модели Хаббарда объясняется довольно просто. Нижние уровни энергии $E_{1,2}$ равны $\varepsilon + V \pm B$ – уровень энергии, складывающийся из собственной энергии электрона и энергии кулоновского отталкивания электрона от электрона, находящегося на соседнем узле, “размывается” на два подуровня (по числу узлов). Вышележащие уровни энергии $E_{3,4}$ равны $\varepsilon + U \pm B$ – когда оба электрона находятся на одном узле, уровень энергии, получающийся в результате сложения собственной энергии и энергии кулоновского отталкивания электронов, “размывается” также на два подуровня. Отметим в связи с вышесказанным, что $\varepsilon = -(U + V)/2$.

2. Решение двухузельной модели Хаббарда методом спиновых флуктуаций

Гамильтониан Хаббарда (1) представим в виде:

$$\begin{aligned} H &= H_0 + H_1, \\ H_0 &= \varepsilon \sum_{\sigma} (n_{1\sigma} + n_{2\sigma}) + B \sum_{\sigma} (a_{1\sigma}^+ a_{2\sigma} + a_{2\sigma}^+ a_{1\sigma}), \\ H_1 &= U(n_{1\uparrow} n_{1\downarrow} + n_{2\uparrow} n_{2\downarrow}) + V(n_{1\uparrow} n_{2\downarrow} + n_{1\downarrow} n_{2\uparrow}). \end{aligned} \quad (6)$$

Согласно полученному выше результату основное состояние димера – антиферромагнитное. Для решения гамильтониана (9) методом спиновых флуктуаций предположим теперь, что в системе есть антиферромагнитное упорядочение. Тогда концентрацию n и среднее значение проекции спина S выразим следующим образом [18]:

$$n = \langle n_{1\sigma} \rangle + \langle n_{1\bar{\sigma}} \rangle = \langle n_{2\sigma} \rangle + \langle n_{2\bar{\sigma}} \rangle, \quad (7)$$

$$2S = \langle n_{1\sigma} \rangle - \langle n_{1\bar{\sigma}} \rangle = \langle n_{2\bar{\sigma}} \rangle - \langle n_{2\sigma} \rangle. \quad (8)$$

Из (7)-(8) при $n = 1$ следует, что

$$\langle n_{1\sigma} \rangle = 1/2 + S, \quad (9)$$

$$\langle n_{1\bar{\sigma}} \rangle = 1/2 - S, \quad (10)$$

где $S = \langle S_1^z \rangle = -\langle S_2^z \rangle$ (равенство $\langle S_1^z \rangle = -\langle S_2^z \rangle$ означает, что спин электрона на одном узле ориентирован преимущественно в одну сторону, а спин электрона на соседнем узле – в другую сторону). Следовательно,

$$\langle n_{2\sigma} \rangle = 1/2 - S, \quad (11)$$

$$\langle n_{2\bar{\sigma}} \rangle = 1/2 + S. \quad (12)$$

Для того, чтобы учесть спиновые флуктуации, введем оператор флуктуации проекции спина $\Delta S = \Delta S^z$ следующим образом (см. формулы (10), (12)):

$$n_{1\bar{\sigma}} = 1/2 - S - \Delta S, \quad (13)$$

$$n_{2\bar{\sigma}} = 1/2 + S + \Delta S. \quad (14)$$

В (13) -(14) мы предположили, что оператор флуктуации проекции спина не зависит от номера узла. Используя формулы (16), (17), уравнения движения (2), запишем в виде:

$$\frac{d}{d\tau} a_{1\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_1 a_{1\sigma}^+(\tau) + B a_{2\sigma}^+(\tau) - U' \Delta S a_{1\sigma}^+(\tau), \quad (15)$$

$$\frac{d}{d\tau} a_{2\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_2 a_{2\sigma}^+(\tau) + B a_{1\sigma}^+(\tau) + U' \Delta S a_{2\sigma}^+(\tau), \quad (16)$$

где

$$\varepsilon_1 = \varepsilon + U(1/2 - S) + V(1/2 + S),$$

$$\varepsilon_2 = \varepsilon + U(1/2 + S) + V(1/2 - S),$$

$$U' = U - V.$$

Введем для операторов представление ”типа представления взаимодействия” следующим образом ($f=1,2$):

$$\begin{aligned} a_{f\sigma}^+(\tau) &= \exp(H_0\tau) \exp(-H_0\tau) a_{f\sigma}^+(\tau) \exp(H_0\tau) \exp(-H_0\tau) = \\ &= \exp(H_0\tau) \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) \exp(-H_0\tau) \end{aligned}, \quad (17)$$

Решение В-U-V модели Хаббарда в приближении статических флуктуаций.

где H_0 – гамильтониан, входящий в (6) с учетом перенормировок $\varepsilon \rightarrow \varepsilon_1$, $\varepsilon \rightarrow \varepsilon_2$. С учетом (17) из уравнений движения (15), (16) можно получить следующие уравнения для неизвестных операторов:

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) = -U' \Delta \tilde{S}(\tau) \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) , \quad (18)$$

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{a}_{2\sigma}^+(\tau) = U' \Delta \tilde{S}(\tau) \tilde{a}_{2\sigma}^+(\tau) , \quad (19)$$

где $\Delta \tilde{S}(\tau) = \exp(-H_0 \tau) \Delta S(\tau) \exp(H_0 \tau)$, ($\Delta S(\tau)$ – оператор флуктуации проекции спина в представлении Гейзенберга). Отметим, что уравнения движения (18), (19) также, как и (15), (16), являются точными. Так как

$$\frac{d}{d\tau} n_{1\bar{\sigma}}(\tau) = B \left(a_{2\bar{\sigma}}^+(\tau) a_{1\bar{\sigma}}(\tau) - a_{1\bar{\sigma}}^+(\tau) a_{2\bar{\sigma}}(\tau) \right) ,$$

из (13) то получается следующее уравнение движения для оператора $\Delta S(\tau)$:

$$\frac{d}{d\tau} \Delta S(\tau) = -B \left(a_{2\bar{\sigma}}^+(\tau) a_{1\bar{\sigma}}(\tau) - a_{1\bar{\sigma}}^+(\tau) a_{2\bar{\sigma}}(\tau) \right) .$$

Уравнение движения для оператора $\Delta \tilde{S}(\tau)$ будет иметь вид:

$$\frac{d}{d\tau} \Delta \tilde{S}(\tau) = 0 ,$$

следовательно, оператор $\Delta \tilde{S}(\tau)$ является интегралом движения: $\Delta \tilde{S}(\tau) = \Delta S(0)$.

Уравнение движения для оператора $\Delta S(0) \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau)$:

$$\frac{d}{d\tau} \Delta S(0) \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) = -U' \Delta S^2(0) \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) . \quad (20)$$

Из равенства $n_{1\bar{\sigma}} n_{1\bar{\sigma}} = n_{1\bar{\sigma}}$ и определения (13) можно получить, что

$$\Delta S^2 = 1/4 - S^2 - 2S \Delta S . \quad (21)$$

Из (18)-(21) вытекает следующая система замкнутых дифференциальных уравнений ($\Phi^2 = 1/4 - S^2$) :

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) = -U' \Delta S(0) \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) , \quad (22)$$

$$\frac{d}{d\tau} \Delta S(0) \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) = 2SU' \Delta S(0) \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) - U' \Phi^2 \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) . \quad (23)$$

Решения системы (22)–(23) равны:

$$\tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) = \left\{ a_{1\sigma}^+(0) \left[\operatorname{ch}(U'\tau/2) - 2S \operatorname{sh}(U'\tau/2) \right] - \right. \\ \left. - 2\Delta S(0) a_{1\sigma}^+(0) \operatorname{sh}(U'\tau/2) \right\} \cdot \exp(U'S\tau) , \quad (24)$$

$$\Delta S(0) \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) = \left\{ -a_{1\sigma}^+(0) \Phi^2 2 \operatorname{sh}(U'\tau/2) + \Delta S(0) a_{1\sigma}^+(0) \cdot \right. \\ \left. \cdot \left[\operatorname{ch}(U'\tau/2) + 2S \operatorname{sh}(U'\tau/2) \right] \right\} \exp(U'S\tau) \quad (25)$$

В случае второго узла получим

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{a}_{2\sigma}^+(\tau) = U' \Delta S(0) \tilde{a}_{2\sigma}^+(\tau) , \quad (26)$$

$$\frac{d}{d\tau} \Delta S(0) \tilde{a}_{2\sigma}^+(\tau) = -2SU' \Delta S(0) \tilde{a}_{2\sigma}^+(\tau) + U' \Phi^2 \tilde{a}_{2\sigma}^+(\tau) . \quad (27)$$

Решения дифференциальных уравнений (26), (27) равны:

$$\tilde{a}_{2\sigma}^+(\tau) = \left\{ a_{2\sigma}^+(0) \left[\operatorname{ch}(U'\tau/2) + 2S \operatorname{sh}(U'\tau/2) \right] + \right. \\ \left. + \Delta S(0) a_{2\sigma}^+(0) 2 \operatorname{sh}(U'\tau/2) \right\} \cdot \exp(-U'S\tau) \quad (28)$$

$$\Delta S(0) \tilde{a}_{2\sigma}^+(\tau) = \left\{ a_{2\sigma}^+(0) \Phi^2 2 \operatorname{sh}(U'\tau/2) + \Delta S(0) a_{2\sigma}^+(0) \cdot \right. \\ \left. \cdot \left[\operatorname{ch}(U'\tau/2) - 2S \operatorname{sh}(U'\tau/2) \right] \right\} \cdot \exp(-U'S\tau) . \quad (29)$$

Согласно определению (17) общее решение, например, для оператора $a_{1\sigma}^+(\tau)$ имеет вид:

$$a_{1\sigma}^+(\tau) = \exp(H_0\tau) \tilde{a}_{1\sigma}^+(\tau) \exp(-H_0\tau) = \exp(H_0\tau) a_{1\sigma}^+(0) \exp(-H_0\tau) \cdot \\ \cdot \left[\operatorname{ch}\left(\frac{U'}{2}\tau\right) - 2S \operatorname{sh}\left(\frac{U'}{2}\tau\right) \right] \exp(U'S\tau) - 2 \exp(H_0\tau) \Delta S(0) \exp(-H_0\tau) \cdot \\ \cdot \exp(H_0\tau) a_{1\sigma}^+(0) \exp(H_0\tau) \operatorname{sh}\left(\frac{U'}{2}\tau\right) \exp(U'S\tau) . \quad (30)$$

Введем следующее обозначение для операторов:

$$\bar{a}_{f\sigma}^+(\tau) = \exp(H_0\tau) a_{f\sigma}^+(0) \exp(-H_0\tau), \quad f = 1, 2 . \quad (31)$$

Уравнения движения для введенных нами операторов (31) имеют вид

$$\frac{d}{d\tau} \bar{a}_{1\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_1 \bar{a}_{1\sigma}^+(\tau) + B \bar{a}_{2\sigma}^+(\tau) , \quad (32)$$

$$\frac{d}{d\tau} \bar{a}_{2\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_2 \bar{a}_{2\sigma}^+(\tau) + B \bar{a}_{1\sigma}^+(\tau) . \quad (33)$$

Решение для системы (32)-(33) равно $(\bar{a}_{1\sigma}^+(0) = a_{1\sigma}^+(0), \bar{a}_{2\sigma}^+(0) = a_{2\sigma}^+(0))$:

$$\begin{aligned} \bar{a}_{1\sigma}^+(\tau) = a_{1\sigma}^+(0) & \left[\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2t_B} \text{sh}(t_B \tau) + \text{ch}(t_B \tau) \right] \exp(\tau(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)/2) + \\ & + a_{2\sigma}^+(0) \frac{B}{t_B} \text{sh}(t_B \tau) \exp(\tau(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)/2) \end{aligned} \quad (34)$$

$$\begin{aligned} \bar{a}_{2\sigma}^+(\tau) = a_{2\sigma}^+(0) & \left[\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{2t_B} \text{sh}(t_B \tau) + \text{ch}(t_B \tau) \right] \exp(\tau(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)/2) + \\ & + a_{1\sigma}^+(0) \frac{B}{t_B} \text{sh}(t_B \tau) \exp(\tau(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)/2) \end{aligned} \quad (35)$$

где $t_B = (((\varepsilon_1 - \varepsilon_2)/2)^2 + B^2)^{1/2}$.

Тогда решение (30) будет равно:

$$\begin{aligned} a_{1\sigma}^+(\tau) = & \left\{ a_{1\sigma}^+(0) \left[\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2t_B} \text{sh}(t_B \tau) + \text{ch}(t_B \tau) \right] + a_{2\sigma}^+(0) \frac{B}{t_B} \text{sh}(t_B \tau) \right\} \times \\ & \times \left[\text{ch}\left(\frac{U'}{2} \tau\right) - 2S \text{sh}\left(\frac{U'}{2} \tau\right) \right] \exp(U'S\tau) \exp(\tau(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)/2) - \\ & - \Delta S(\tau) \left\{ a_{1\sigma}^+(0) \left[\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2t_B} \text{sh}(t_B \tau) + \text{ch}(t_B \tau) \right] + a_{2\sigma}^+(0) \frac{B}{t_B} \text{sh}(t_B \tau) \right\} \times \\ & \times 2 \text{sh}\left(\frac{U'}{2} \tau\right) \exp(U'S\tau) \exp(\tau(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)/2) \end{aligned} \quad (36)$$

где $\Delta S(\tau)$ – оператор в представлении Гейзенберга. Вычислим антикоммутаторную функцию Грина, имея решение (36), по методике, изложенной в [12]. Получим, что

$$\begin{aligned} \langle\langle a_{1\sigma}^+ | a_{1\sigma} \rangle\rangle_E = & \frac{i}{2\pi} \left\{ \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} - S \right) \left(1 - \frac{SU'}{t_B} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} - U' \left(S + \frac{1}{2} \right) - t_B} + \right. \\ & + \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} - S \right) \left(1 + \frac{SU'}{t_B} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} - U' \left(S + \frac{1}{2} \right) + t_B} \end{aligned} \quad (37)$$

$$+ \frac{\frac{1}{2}\left(\frac{1}{2}+S\right)\left(1-\frac{SU'}{t_B}\right)}{E-\frac{\varepsilon_1+\varepsilon_2}{2}-U'\left(S-\frac{1}{2}\right)-t_B} + \frac{\frac{1}{2}\left(\frac{1}{2}+S\right)\left(1+\frac{SU'}{t_B}\right)}{E-\frac{\varepsilon_1+\varepsilon_2}{2}-U'\left(S-\frac{1}{2}\right)+t_B} \Bigg\}.$$

С помощью спектральной теоремы [17] из (37) можно написать уравнение для определения $\langle n_{l\sigma} \rangle$. Аналогичным образом мы можем получить уравнение для $\langle n_{l\bar{\sigma}} \rangle$. С помощью этих уравнений можно написать уравнение для химпотенциала μ ($\mu = -\varepsilon$) и для намагниченности $2S$. Из этих уравнений следует, что при температуре $T=0$ условию $n=1$ соответствует равенство $\varepsilon = -(U+V)/2$. Из уравнения же для намагниченности следует, что при $n=1$ величина проекции спина $S=0$. Полагая, что $S=0$ при $n=1$ из (37) получим:

$$\begin{aligned} \langle a_{l\sigma}^+ | a_{l\sigma} \rangle_E = & \frac{i}{2\pi} \left\{ \frac{1/4}{E-U'/2-B} + \frac{1/4}{E-U'/2+B} + \right. \\ & \left. + \frac{1/4}{E+U'/2-B} + \frac{1/4}{E+U'/2+B} \right\}. \end{aligned} \quad (38)$$

Антикоммутаторная функция Грина (38) совпадает с антикоммутаторной функцией Грина (4), вычисленной при $T=0$ точно. Таким образом, в случае двух узлов развитая в этой главе методика расчета приводит при $T=0$ к совпадению с точным результатом. Это позволяет надеяться, что данную методику можно применять, по-видимому, и для расчета соответствующих величин в случае двух и трех измерений.

3. Энергетический спектр двумерной модели Хаббарда

Гамильтониан Хаббарда запишем с учетом отталкивания электронов, находящихся на соседних узлах кристаллической решетки:

$$\begin{aligned} H &= H_0 + H_1, \\ H_0 &= \varepsilon \sum_{f,\sigma} n_{f\sigma} + \sum_{f \neq l, \sigma} B_{f,l} a_{f\sigma}^+ a_{l\sigma}, \\ H_1 &= \frac{U}{2} \sum_{f,\sigma} n_{f\sigma} n_{f\bar{\sigma}} + \frac{V}{2} \sum_{f \neq l, \sigma} n_{f\sigma} n_{l\bar{\sigma}} + \frac{V}{2} \sum_{f \neq l, \sigma} n_{f\sigma} n_{l\sigma}. \end{aligned} \quad (39)$$

В гамильтониан (39) мы дополнительно ввели слагаемое, описывающее кулоновское отталкивание электронов с одинаковыми проекциями спинов, находящихся на соседних узлах решетки, потому что в отличие от димера на

Решение В-U-V модели Хаббарда в приближении статических флуктуаций.

соседних узлах кристаллической решетки из-за перескоков могут оказаться электроны с различными ориентациями спинов (как $\uparrow\downarrow$, так и $\uparrow\uparrow$, $\downarrow\downarrow$).

Вводя представления о подрешетках в системе, характеризуемой гамильтонианом (39), можно получить следующие уравнения движения для операторов рождения частиц разных подрешеток в представлении Гейзенберга:

$$\begin{aligned}\frac{d}{d\tau}a_{f\sigma}^+ &= \varepsilon a_{f\sigma}^+ + \sum_l B_{f,l} a_{l\sigma}^+ + U n_{f\bar{\sigma}} a_{f\sigma}^+ + V \sum_l n_{l\bar{\sigma}} a_{f\sigma}^+ + V \sum_l n_{l\sigma} a_{f\sigma}^+, \\ \frac{d}{d\tau}a_{l\sigma}^+ &= \varepsilon a_{l\sigma}^+ + \sum_f B_{f,l} a_{f\sigma}^+ + U n_{l\bar{\sigma}} a_{l\sigma}^+ + V \sum_f n_{f\bar{\sigma}} a_{l\sigma}^+ + V \sum_f n_{f\sigma} a_{l\sigma}^+.\end{aligned}\quad (40)$$

Полагая, аналогично (13), (14):

$$n_{f\bar{\sigma}} = 1/2 - S - \Delta S, \quad n_{f\sigma} = 1/2 + S + \Delta S, \quad (41)$$

$$n_{l\bar{\sigma}} = 1/2 + S + \Delta S, \quad n_{l\sigma} = 1/2 - S - \Delta S, \quad (42)$$

где $S = \langle S_f^z \rangle = -\langle S_l^z \rangle$ ($l = f + \Delta$, вектор Δ соединяет соседние атомы [18]), $n = 1$, оператор флуктуации проекции спина $\Delta S = \Delta S_z$ по нашему предположению является однородным в каждой из подрешеток и не зависит от номера узла.

С учетом (41), (42) дифференциальные уравнения (40) напомним в виде:

$$\frac{d}{d\tau}a_{f\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_1 a_{f\sigma}^+(\tau) + \sum_l B_{f,l} a_{l\sigma}^+(\tau) - U \Delta S a_{f\sigma}^+(\tau), \quad (43)$$

$$\frac{d}{d\tau}a_{l\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_2 a_{l\sigma}^+(\tau) + \sum_f B_{f,l} a_{f\sigma}^+(\tau) + U \Delta S a_{l\sigma}^+(\tau) \quad (44)$$

где

$$\varepsilon_1 = \varepsilon + U(1/2 - S) + 4V(1/2 + S) + 4V(1/2 - S),$$

$$\varepsilon_2 = \varepsilon + U(1/2 + S) + 4V(1/2 - S) + 4V(1/2 + S),$$

Вводя представление “типа представления взаимодействия”:

$$a_{j\sigma}^+(\tau) = \exp(H_0\tau) \tilde{a}_{j\sigma}^+(\tau) \exp(-H_0\tau), \quad (j=f,l), \quad (45)$$

где H_0 – гамильтониан в (39) с учетом перенормировок собственных энергий электронов ($\varepsilon \rightarrow \varepsilon_1$, $\varepsilon \rightarrow \varepsilon_2$). В этом случае получим следующие уравнения для неизвестных операторов:

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) = -U \Delta \tilde{S}(\tau) \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau), \quad (46)$$

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) = U \Delta \tilde{S}(\tau) \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) , \quad (47)$$

где $\Delta \tilde{S}(\tau) = \exp(-H_0 \tau) \Delta S(\tau) \exp(H_0 \tau)$, $\Delta S(\tau)$ – оператор флуктуации спина в представлении Гейзенберга. Уравнение движения для оператора $\Delta \tilde{S}(\tau)$:

$$\begin{aligned} \frac{d}{d\tau} \Delta \tilde{S}(\tau) &= \frac{d}{d\tau} \exp(-H_0 \tau) \Delta S(\tau) \exp(H_0 \tau) = [H_0, \Delta \tilde{S}(\tau)] + \\ &+ \exp(-H_0 \tau) \frac{d\Delta S(\tau)}{d\tau} \exp(H_0 \tau) = \sum_l B_{jl} (\tilde{a}_{l\bar{\sigma}}^+ \tilde{a}_{f\bar{\sigma}} - \tilde{a}_{f\bar{\sigma}}^+ \tilde{a}_{l\bar{\sigma}}) - \\ &- \sum_l B_{jl} (\tilde{a}_{l\bar{\sigma}} \tilde{a}_{f\bar{\sigma}}^+ - \tilde{a}_{f\bar{\sigma}} \tilde{a}_{l\bar{\sigma}}^+) = 0. \end{aligned}$$

Таким образом, оператор $\Delta \tilde{S}(\tau)$ является интегралом движения: $\Delta \tilde{S}(\tau) = \Delta S(0)$. В этом смысле выбранное нами приближение при решении модели Хаббарда будем называть приближением статических флуктуаций [10].

Используя свойство оператора $\Delta S = \Delta S(0)$:

$$\Delta S^2 = \Phi^2 - 2S\Delta S, \quad \Phi^2 = 1/4 - S^2 , \quad (48)$$

мы можем написать следующие уравнения движения:

$$\frac{d}{d\tau} \Delta S \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) = 2SU \Delta S(0) \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) - U \Phi^2 \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) , \quad (49)$$

$$\frac{d}{d\tau} \Delta S(0) \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) = -2SU \Delta S(0) \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) + U \Phi^2 \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) . \quad (50)$$

Решения системы дифференциальных уравнений (46), (49) равны:

$$\begin{aligned} \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) &= \exp(US\tau) \cdot \\ &\cdot \left\{ a_{f\sigma}^+(0) [\operatorname{ch}(U\tau/2) - 2S \operatorname{sh}(U\tau/2)] - 2\Delta S a_{f\sigma}^+(0) \operatorname{sh}(U\tau/2) \right\} , \end{aligned} \quad (51)$$

$$\begin{aligned} \Delta S \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) &= \exp(US\tau) \cdot \\ &\cdot \left\{ \Delta S a_{f\sigma}^+(0) [\operatorname{ch}(U\tau/2) + 2S \operatorname{sh}(U\tau/2)] - 2\Phi^2 a_{f\sigma}^+(0) \operatorname{sh}(U\tau/2) \right\} . \end{aligned} \quad (52)$$

Система уравнений (47), (50) имеет решения:

$$\begin{aligned} \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) &= \exp(-US\tau) \cdot \\ &\cdot \left\{ a_{l\sigma}^+(0) [\operatorname{ch}(U\tau/2) + 2S \operatorname{sh}(U\tau/2)] + 2\Delta S a_{l\sigma}^+(0) \operatorname{sh}(U\tau/2) \right\} , \end{aligned} \quad (53)$$

$$\begin{aligned} \Delta S \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) &= \exp(-US\tau) \cdot \\ &\cdot \left\{ \Delta S a_{l\sigma}^+(0) [\operatorname{ch}(U\tau/2) - 2S \operatorname{sh}(U\tau/2)] + 2\Phi^2 a_{l\sigma}^+(0) \operatorname{sh}(U\tau/2) \right\} . \end{aligned} \quad (54)$$

Тогда общее решение (45) будет равно:

$$a_{f\sigma}^+(\tau) = \exp(H_0\tau) \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) \exp(-H_0\tau) = \exp(US\tau) \cdot \left\{ \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) [\operatorname{ch}(U\tau/2) - 2S \operatorname{sh}(U\tau/2)] - 2\Delta S(\tau) \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) \operatorname{sh}(U\tau/2) \right\}, \quad (55)$$

$$a_{l\sigma}^+(\tau) = \exp(-US\tau) \cdot \left\{ \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) [\operatorname{ch}(U\tau/2) + 2S \operatorname{sh}(U\tau/2)] + 2\Delta S(\tau) \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) \operatorname{sh}(U\tau/2) \right\}, \quad (56)$$

где $\Delta S(\tau)$ – оператор в гейзенберговском представлении (при этом мы воспользовались приближением $\Delta \tilde{S}(\tau) = \Delta S(0)$) и введены операторы:

$$\tilde{a}_{j\sigma}^+(\tau) = \exp(H_0\tau) a_{j\sigma}^+(0) \exp(-H_0\tau), \quad (j = f, l). \quad (57)$$

Уравнения движения для последних, введенных нами, операторов, как следует из (43), (44), имеют вид:

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_1 \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau) + \sum_l B_{fl} \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau), \quad (58)$$

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_2 \tilde{a}_{l\sigma}^+(\tau) + \sum_f B_{fl} \tilde{a}_{f\sigma}^+(\tau). \quad (59)$$

После преобразования Фурье [22]:

$$a_{f\sigma}^+ = (2/N)^{1/2} \sum_k a_{k\sigma}^+ \exp(-ikr_f), \quad (60)$$

$$a_{l\sigma}^+ = (2/N)^{1/2} \sum_k b_{k\sigma}^+ \exp(-ikr_l), \quad (61)$$

получим следующую систему уравнений

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{a}_{k\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_1 \tilde{a}_{k\sigma}^+(\tau) + B_k \tilde{b}_{k\sigma}^+(\tau), \quad (62)$$

$$\frac{d}{d\tau} \tilde{b}_{k\sigma}^+(\tau) = \varepsilon_2 \tilde{b}_{k\sigma}^+(\tau) + B_k \tilde{a}_{k\sigma}^+(\tau), \quad (63)$$

где $B_k = -2B(\cos(k_x a) + \cos(k_y a))$, a – параметр решетки. Решения уравнений (62), (63) равны:

$$\tilde{a}_{k\sigma}^+(\tau) = \exp((\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\tau/2) \cdot \left\{ a_{k\sigma}^+(0) \left[\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2t_k} \operatorname{sh}(t_k \tau) + \operatorname{ch}(t_k \tau) \right] + \frac{B_k}{t_k} b_{k\sigma}^+(0) \operatorname{sh}(t_k \tau) \right\}, \quad (64)$$

$$\tilde{b}_{k\sigma}^+(\tau) = \exp((\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\tau/2) \cdot \left\{ b_{k\sigma}^+(0) \left[-\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2t_k} \operatorname{sh}(t_k \tau) + \operatorname{ch}(t_k \tau) \right] + \frac{B_k}{t_k} a_{k\sigma}^+(0) \operatorname{sh}(t_k \tau) \right\}, \quad (65)$$

где

$$t_k = (((\varepsilon_1 - \varepsilon_2)/2)^2 + B_k^2)^{1/2}, \quad \bar{a}_{k\sigma}^+(0) = a_{k\sigma}^+(0), \quad \bar{b}_{k\sigma}^+(0) = b_{k\sigma}^+(0).$$

Решения (58), (59) после преобразования Фурье (63), (64) будут иметь вид:

$$a_{k\sigma}^+(\tau) = \left[a_{k\sigma}^+(0) \left[\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2t_k} \text{sh}(t_k \tau) + \text{ch}(t_k \tau) \right] + \frac{B_k}{t_k} b_{k\sigma}^+(0) \text{sh}(t_k \tau) \right] \cdot, \quad (66)$$

$$\cdot [\text{ch}(U\tau/2) - 2(S + \Delta S(\tau)) \text{sh}(U\tau/2)] \exp((\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\tau/2) \exp(US\tau)$$

$$b_{k\sigma}^+(\tau) = \left[b_{k\sigma}^+(0) \left[-\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2t_k} \text{sh}(t_k \tau) + \text{ch}(t_k \tau) \right] + \frac{B_k}{t_k} a_{k\sigma}^+(0) \text{sh}(t_k \tau) \right] \cdot. \quad (67)$$

$$[\text{ch}(U\tau/2) + 2(S + \Delta S(\tau)) \text{sh}(U\tau/2)] \exp((\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\tau/2) \exp(-US\tau)$$

В (66), (67) заключена вся информация о физических свойствах модели Хаббарда в рамках выбранного приближения. Нас в первую очередь интересует энергетический спектр системы. С этой целью вычислим антикоммутирующую функцию Грина. Как следует из (66), (67) фурье-образы антикоммутирующих функций Грина равны:

$$\begin{aligned} \langle\langle a_{k\sigma}^+ | a_{k\sigma} \rangle\rangle_E = \\ = \frac{i}{2\pi} \left\{ \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} - S \right) \left(1 - \frac{SU}{t_k} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} - U \left(\frac{1}{2} + S \right) - t_k} + \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} + S \right) \left(1 - \frac{SU}{t_k} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} - S \right) - t_k} + \right. \\ \left. + \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} - S \right) \left(1 + \frac{SU}{t_k} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} - U \left(\frac{1}{2} + S \right) + t_k} + \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} + S \right) \left(1 + \frac{SU}{t_k} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} - S \right) + t_k} \right\} \end{aligned} \quad (68)$$

$$\begin{aligned} \langle\langle b_{k\sigma}^+ | b_{k\sigma} \rangle\rangle_E = \\ = \frac{i}{2\pi} \left\{ \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} + S \right) \left(1 + \frac{SU}{t_k} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} - U \left(\frac{1}{2} - S \right) - t_k} + \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} - S \right) \left(1 + \frac{SU}{t_k} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} + S \right) - t_k} + \right. \\ \left. + \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} + S \right) \left(1 - \frac{SU}{t_k} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} - U \left(\frac{1}{2} - S \right) + t_k} + \frac{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} - S \right) \left(1 - \frac{SU}{t_k} \right)}{E - \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} + S \right) + t_k} \right\} \end{aligned} \quad (69)$$

Решение В-В-У модели Хаббарда в приближении статических флуктуаций.

где $\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} = \varepsilon + \frac{U}{2} + 4V$. Отметим, что

$$\begin{aligned}\langle\langle a_{k\sigma}^+ | a_{k\sigma} \rangle\rangle_E &= \langle\langle b_{k\bar{\sigma}}^+ | b_{k\bar{\sigma}} \rangle\rangle_E, \\ \langle\langle a_{k\bar{\sigma}}^+ | a_{k\bar{\sigma}} \rangle\rangle_E &= \langle\langle b_{k\sigma}^+ | b_{k\sigma} \rangle\rangle_E.\end{aligned}$$

С помощью флуктуационно-диссипационной теоремы [17] можно получить, что

$$\begin{aligned}\langle a_{k\sigma}^+ a_{k\sigma} \rangle &= \langle b_{k\bar{\sigma}}^+ b_{k\bar{\sigma}} \rangle = \frac{1}{2} \left\{ \left(\frac{1}{2} - S \right) \left[\left(1 - \frac{SU}{t_k} \right) f^+ \left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} + S \right) + t_k \right) + \right. \right. \\ &+ \left. \left(1 + \frac{SU}{t_k} \right) f^+ \left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} + S \right) - t_k \right) \right] + \left(\frac{1}{2} + S \right) \left[\left(1 - \frac{SU}{t_k} \right) \right. \end{aligned} \quad (70)$$

$$\begin{aligned}&\left. \cdot f^+ \left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} - U \left(\frac{1}{2} - S \right) + t_k \right) + \left(1 + \frac{SU}{t_k} \right) f^+ \left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} - U \left(\frac{1}{2} - S \right) - t_k \right) \right] \Big\} \\ \langle a_{k\bar{\sigma}}^+ a_{k\bar{\sigma}} \rangle &= \langle b_{k\sigma}^+ b_{k\sigma} \rangle = \frac{1}{2} \left\{ \left(\frac{1}{2} + S \right) \left[\left(1 + \frac{SU}{t_k} \right) f^+ \left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} - S \right) + t_k \right) + \right. \right. \\ &+ \left. \left(1 - \frac{SU}{t_k} \right) f^+ \left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} - S \right) - t_k \right) \right] + \left(\frac{1}{2} + S \right) \left[\left(1 + \frac{SU}{t_k} \right) \right. \\ &\left. \cdot f^+ \left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} - S \right) + t_k \right) + \left(1 - \frac{SU}{t_k} \right) f^+ \left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + U \left(\frac{1}{2} - S \right) - t_k \right) \right] \Big\} \end{aligned} \quad (71)$$

Из равенств (70), (71) можно получить уравнение на химпотенциал:

$$n = \frac{2}{N} \sum_{k,\sigma} \langle a_{k\sigma}^+ a_{k\sigma} \rangle,$$

из которого следует, что при точно наполовину заполненной зоне ($n = 1$) собственная энергия ε (химпотенциал $\mu = -\varepsilon$) равна:

$$\varepsilon = -(U + 8V)/2. \quad (72)$$

Энергетический спектр модели Хаббарда в случае точного полузаполнения имеет вид:

$$\begin{aligned}E_{1-4} &= \pm U \left(\frac{1}{2} + S \right) \pm t_k, \\ E_{5-8} &= \pm U \left(\frac{1}{2} - S \right) \pm t_k.\end{aligned} \quad (73)$$

Отметим, что спектр (73) инвариантен относительно замен как $S \rightarrow -S$, так и $B \rightarrow -B$. Спектр элементарных возбуждений в случае $S = 0.45$ показан на рис. 1. При выбранных значениях параметров модели Хаббарда в этом случае образуются три подзоны, средняя подзона состоит из шести перекрывающихся ветвей. Ветви энергетических возбуждений заполняются электронами с разными вероятностями. На рис. 2 показаны вероятности заполнения двух нижних ветвей, из рисунка следует, что «емкости» энергетических уровней нижней ветви практически не отличается от нуля. При стремлении $S \rightarrow 1/2$, как будет показано ниже, из восьми ветвей останутся только две ветви.

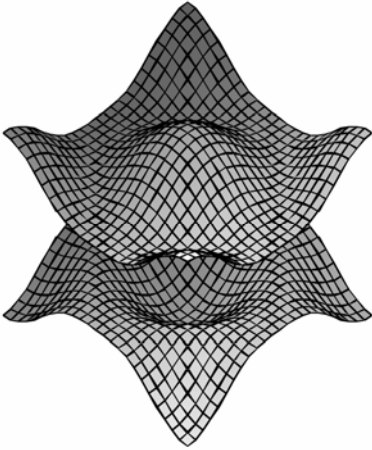


Рис. 1. Энергетический спектр двумерной модели Хаббарда при следующих значениях параметров $S = 0.45$, $U = 6eV$, $B = 1.5$, $n = 1$. Спектр состоит из восьми ветвей

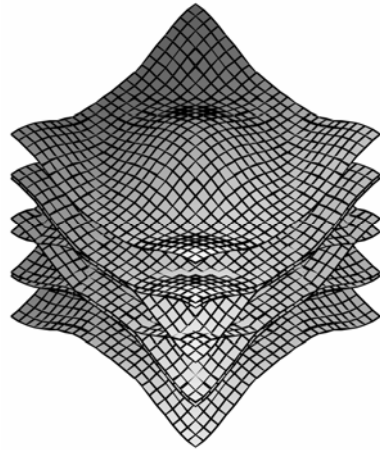


Рис. 2. Вероятности заполнения двух нижних ветвей энергетического спектра, изображенного на рис. 1 при тех же значениях параметров, что и на рис. 1. Нижний график соответствует заполнению нижней ветви, верхний график – второй снизу ветви энергетического спектра

В случае сильного взаимодействия ранее было получено [11], что $S = 1/2$. В этом случае фурье-образы антикоммутаторных функций Грина (68), (69) будут определяться следующим образом:

$$\langle\langle a_{k\sigma}^+ | a_{k\sigma} \rangle\rangle_E = \langle\langle b_{k\bar{\sigma}}^+ | b_{k\bar{\sigma}} \rangle\rangle_E = \frac{i}{2\pi} \frac{1}{2} \left\{ \frac{1 - U/2t_k}{E - t_k} + \frac{1 + U/2t_k}{E + t_k} \right\}, \quad (74)$$

$$\left\langle \left\langle a_{k\bar{\sigma}}^+ \middle| a_{k\bar{\sigma}} \right\rangle \right\rangle_E = \left\langle \left\langle b_{k\sigma}^+ \middle| b_{k\sigma} \right\rangle \right\rangle_E = \frac{i}{2\pi} \frac{1}{2} \left\{ \frac{1+U/2t_k}{E-t_k} + \frac{1-U/2t_k}{E+t_k} \right\}. \quad (75)$$

Полюса функций Грина (74), (75) определяют энергетический спектр системы:

$$E_{1-2} = \pm \sqrt{(U/2)^2 + 4B^2(\cos(k_x a) + \cos(k_y a))^2}. \quad (76)$$

Вид спектра (76) характерен для антиферромагнитного основного состояния модели Хаббарда [23]. Спектр (76) приведен на рис. 3. При $n = 1$ основное состояние модели Хаббарда в режиме сильных корреляций является антиферромагнитным и диэлектрическим. Отметим, что ширина подзон Хаббарда уменьшается из-за эффекта сильных корреляций по сравнению со случаем предела слабых корреляций, когда $S = 0$.

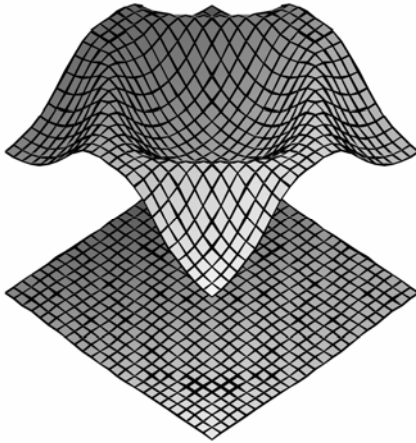


Рис. 3. Энергетический спектр двухмерной модели Хаббарда в пределе сильных корреляций ($S = 1/2$, $n = 1$)

4. Обсуждение результатов

Приведенная в работе методика расчета функций Грина и корреляционных функций позволяет вычислить энергетический спектр модели Хаббарда. Точное решение в случае модели Хаббарда, содержащего два узла кристаллической решетки, показало, что основное состояние этой системы характеризуется следующими равенствами для термодинамических средних:

$$\begin{aligned} \langle n_{i\sigma} \rangle &= \langle n_{i\bar{\sigma}} \rangle = \langle n_{i\sigma} n_{j\bar{\sigma}} \rangle = \\ &= \langle a_{j\sigma}^+ a_{j\bar{\sigma}} a_{i\bar{\sigma}}^+ a_{i\sigma} \rangle = 1/2, \\ \langle n_{i\sigma} n_{j\sigma} \rangle &= \langle n_{i\sigma} n_{i\bar{\sigma}} \rangle = 0. \end{aligned} \quad (77)$$

Решение этой же задачи в приближении статических флуктуаций показало, что антикоммутаторная

функция Грина, энергетический спектр, корреляционные функции полностью совпадают с точными результатами, поэтому это приближение было применено для расчета характеристик двухмерной модели Хаббарда. Получено, что в режиме сильных корреляций в системе при точно наполовину заполненной зоне основным состоянием является антиферромагнитное состояние. В рамках данной статьи мы не затрагивали такие темы, как природа основного состояния

при $n \neq 1$, разрушение дальнего порядка при допировании, типы элементарных возбуждений, которые возникают в случае $n \neq 1$. По-видимому, развитая в настоящей работе методика расчета функций Грина и корреляционных позволяет исследовать и эти проблемы. Мы же отметим следующее. Из уравнения (46), после преобразования Фурье (63), (64) можно получить точное уравнение для антикоммутирующих функций Грина:

$$\begin{aligned} \frac{d}{d\tau} \langle [a_{k\sigma}^+(\tau), a_{k\sigma}]_+ \rangle = \\ = \varepsilon_1 \langle [a_{k\sigma}^+(\tau), a_{k\sigma}]_+ \rangle + B_k \langle [b_{k\sigma}^+(\tau), a_{k\sigma}]_+ \rangle - U \langle [\Delta S(\tau) a_{k\sigma}^+(\tau), a_{k\sigma}]_+ \rangle \end{aligned} \quad (78)$$

Аналогичное уравнение можно получить и из дифференциального уравнения (44). Антикоммутирующие функции Грина в (78), зависящие от «времени» τ , можно вычислить с помощью решений (66) и (67), в случае точного полузаполнения зоны ($n = 1$) получим:

$$\langle [a_{k\sigma}^+(\tau), a_{k\sigma}]_+ \rangle = \left[\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2t_k} \text{sh}(t_k \tau) + \text{ch}(t_k \tau) \right]. \quad (79)$$

$$\begin{aligned} [\text{ch}(U\tau/2) - 2S \text{sh}(U\tau/2)] \exp(US\tau) \exp((\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\tau/2) \\ \langle [\Delta S(\tau) a_{k\sigma}^+(\tau), a_{k\sigma}]_+ \rangle = -\Phi^2 \left[\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2t_k} \text{sh}(t_k \tau) + \text{ch}(t_k \tau) \right]. \end{aligned} \quad (80)$$

$$\begin{aligned} \cdot 2 \text{sh}(U\tau/2) \exp(US\tau) \exp((\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\tau/2) \\ \langle [b_{k\sigma}^+(\tau), a_{k\sigma}]_+ \rangle = \frac{B_k}{t_k} \text{sh}(t_k \tau) [\text{ch}(U\tau/2) + 2S \text{sh}(U\tau/2)] \cdot \\ \cdot \exp(-US\tau) \exp((\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\tau/2) \end{aligned} \quad (81)$$

Подставляя получившиеся выражения для функций Грина (79)-(81) в дифференциальное уравнение (78), можно показать, что как при $S = 0$, так и при $S = 1/2$ антикоммутирующие функции Грина (79)–(81) удовлетворяют уравнению движения (78). Таким образом, в случае точного полузаполнения зоны как при $S = 0$, так и при $S = 1/2$, функции Грина (79)–(81), по-видимому, вычислены вполне корректно. Это же самое касается и других уравнений движения. Полученные результаты позволяют надеяться, что излагаемый в работе метод спиновых флуктуаций наиболее эффективно работает вблизи $S = 0$ и $S = 1/2$.

Автор выражает благодарность Р.Р. Нигматуллину за обсуждение результатов работы.

Литература

1. Hubbard J. // Proc. Roy. Soc. - 1963. - V. 276. - N. 1365. - P. 238.
2. Emery V.J. // Phys. Rev. Lett. - 1987. - V. 58. - N. 26. - P. 2794.
3. Изюмов Ю.А., Кацнельсон М.И., Скрябин Ю.Н. Магнетизм коллективизированных электронов.- М., Физматлит, 1994. - 366 с.
4. Изюмов Ю.А., Скрябин Ю.Н. Базовые модели в квантовой теории магнетизма. - Екатеринбург, 2002. - 259 с.
5. Овчинников С.Г. // УФН. - 1997.- Т. 167.- № 10. - С. 1043.
6. Изюмов Ю.А. // УФН.- 1995. - Т. 165.- № 4. - С. 403.
7. Изюмов Ю.А. // УФН.- 1997.- Т. 167.- № 5. - С. 465.
8. Anderson P.W. // Science.- 1987. - V. 253. N. 6. - P. 1196.
9. Shengelaya F., Keller H., Müller K.A., Kochelaev B.I, Conder K. // Phys. Rev. B. - 2001. - V.63. - P. 144513.
10. Лоскутов В.В., Миронов Г.И., Нигматуллин Р.Р. // ФНТ. - 1997. - Т.22.- № 3. - С. 282.
11. Миронов Г.И. // ФТТ. - 1999. - Т.41. - № 6. - С. 951.
12. Миронов Г.И. // ФТТ. - 2002. - Т.44. -№ 2. - С. 209.
13. Lieb E., Wu F.Y. // Phys. Rev. Lett. - 1968. - V.20. - N. 25. - P.1445.
14. Takahashi M. // Progr. Theor. Phys. - 1972. - V.47. - N. 1. - P.69.
15. Bethe H.// Zs. Phys. - 1931. - V. B71. - N. 3. - P. 205.
16. Миронов Г.И. //Структура и динамика молекулярных систем. Сборник статей. Казань, 2003, С. 323.
17. Тябликов С.В. Методы квантовой теории магнетизма. -М.:Наука, 1975. – 528 с.
18. Хомский Д.И. // ФММ. - 1970. - Т. 29. - № 1. - С. 31.
19. Mattis D.C. The theory of magnetism. - New York: Harper and Row, 1965. (Пер. с англ. под ред. И.М. Лифшица и М.И. Каганова: Маттис Д. Теория магнетизма. - М.: Мир. - 407 с.)
20. Ашкрофт Н.А., Мермин Н. Физика твердого тела. Т. 2. - М.: Мир, 1979 - 422 с.
21. Свирский М.С., Свирская Л.М.// ЖЭТФ. - 1990. - Т.97. -№ 2.- С.489.
22. Мория Т. Спиновые флуктуации в магнетиках с коллективизированными электронами.- М.: Мир, 1988. - 287 с.
23. Малышев С.Л., Попов В.Н. // ТМФ. - 1995. - Т. 105.- № 1. - С. 149.

**THE INVESTIGATION OF THE $B-U-V$ HUBBARD MODEL
IN THE STATIC-FLUCTUATION APPROXIMATION**

G.I. Mironov.

Mari State Pedagogical Institute, 424002 Ioshkar-Ola

We investigate the $B-U-V$ Hubbard model in the Static-Fluctuation Approximation. The first part of the article is devoted to the exact solution of the Hubbard model in the case of two sites of the crystal lattice. We got and solved system of 24 differential equations for the 24 Fermi operators. The anticommutator Green's function for dimer was derived.

In the second part we calculate the anticommutator Green's function for dimer in the Static-Fluctuation Approximation. Comparison of the exact and approximate solutions shows that the Static-Fluctuation Approximation adequately describes the Hubbard model for case of two sites of the crystal lattice. The third part is concerned with the solution in the Static-Fluctuation Approximation of the two-dimensional Hubbard model. We investigate the energy spectrum of the two-dimensional Hubbard model, the numerator of the anticommutator Green's function. It should be noted that in the case of strong correlations, the ground-state energy of the antiferromagnetic phase is found to be lower than that of the paramagnetic phase.

SPIN DYNAMICS IN $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ DOPED WITH Fe: AN ESR-STUDY

H.-A. Krug von Nidda¹, G. Kruschel², A. Loidl¹, and B. Elschner²

¹ *University of Augsburg, 86135 Augsburg, Germany*

² *Technical University of Darmstadt, 64289 Darmstadt, Germany*

The electron-spin resonance (ESR) of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ is investigated on polycrystalline samples for $0 \leq x \leq 0.3$ and $0 \leq y \leq 0.1$. The ESR spectrum consists of the superposition of two Lorentzian lines, which can be unambiguously attributed to Fe^{3+} and intrinsic Cu-spin polaron signals. The simultaneous observation of both signals allows to describe the temperature dependence of the relaxation of the Fe^{3+} ions in terms of Cu-spin fluctuations.

1. Introduction

Since the discovery of high-temperature superconductivity in hole-doped La_2CuO_4 by Bednorz and Müller [1], layered cuprates have become a central research field in modern solid-state physics, and an enormous number of experimental and theoretical investigations deals with the correlation of magnetism and superconductivity in these transition-metal oxides [2,3]. Thereby, the dynamic susceptibility of the Cu-spin system plays a key role in understanding the complex physics in cuprates. Besides neutron scattering and nuclear magnetic resonance (NMR), electron-spin resonance (ESR) provides a microscopic probe for the spin dynamics of the electronic system. After a number of early unsuccessful attempts to measure directly the intrinsic ESR signal of the Cu spins in high-temperature superconductors, theoretical analyses derived an estimate for the order of magnitude of the linewidth for the ESR signal of the Cu-spins ($\Delta H \approx 190$ kOe at 380 K). Due to this large linewidth the Cu resonance could not be detected in conventional ESR experiments [4,5,6]. Nevertheless, intrinsic Cu signals have been detected later on in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ single crystals and explained by the formation of three-spin magnetic polarons of two Cu spins coupled via a hole spin residing on the bridging oxygen between the Cu ions [7,8]. A related phenomenon is the intrinsic signal from chain fragments in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ single crystals [9,10].

Many ESR experiments have been carried out by doping small amounts of paramagnetic ions, e.g. rare-earth ions like Er^{3+} or Gd^{3+} on the La^{3+} or Y^{3+} site or the $3d$ -ion Mn^{2+} on the Cu^{2+} site, which indirectly probe the dynamic Cu susceptibility [11]. Detailed ESR investigations by Kochelaev and coworkers have been devoted to the spin dynamics of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ doped with Mn^{2+} ions [12,13]. As a consequence of the relatively strong isotropic superexchange between the Cu and the Mn ions and their nearly coincident Larmor frequencies, the spin systems

of the Mn^{2+} impurities and the Cu^{2+} ions display a collective motion of their total magnetic moments M_{Mn} and M_{Cu} in an external magnetic field. The relaxation rates between the Mn and the Cu ions are much larger than the relaxation rates to the lattice, and hence the conditions for the well-known "bottleneck" effect are fulfilled (see e.g. Ref. [14]). The lattice includes phonons, charge carriers like oxygen-holes, and spin waves. As a striking sign of the strong bottleneck regime the linewidth is proportional to the inverse Mn concentration, i.e. the higher the Mn-concentration the narrower the ESR line at a fixed temperature.

Here we present ESR results obtained in Fe-doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$. At first sight, one would expect that the Fe ions behave like the Mn ions with all the consequences which are evidenced in Ref. [12]. But there is an important difference: The fact that we observe ESR spectra even at room temperature shows that one deals with Fe^{3+} ($S = 5/2$; $L = 0$). We found that only samples with $x > 0$ contained dissolved Fe ions. In the $x = 0$ samples the Fe is clustering and the ESR signal behaves in a peculiar way. This finding is a strong indication that we truly deal with Fe^{3+} on a Cu^{2+} site and that each Fe^{3+} needs at least one Sr^{2+} for charge compensation. Mn^{2+} has indeed the same electron configuration, hence there is no necessity for charge compensation on a Cu^{2+} site.

Several reports exist already about iron ESR in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ [15–22]. These investigations were confined to either the variation of the Sr concentration x at constant Fe doping y or the variation of the Fe doping y for a fixed Sr concentration x . Usually, a single resonance was detected near $g = 2$ with a linewidth of the order of 1 kOe, which increases both to high temperatures and low temperatures with a minimum in between. A strong correlation has been found to exist between the temperatures of the minimum in the linewidth and the minimum observed in the electrical resistance [15, 19], suggesting the importance of charge-carrier localization for the low-temperature increase of the linewidth. The high-temperature increase of the linewidth has been discussed controversially in terms of a Korringa process [19] or in terms of Cu-spin fluctuations [17].

The aim of our present work is a comprehensive ESR study of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ dependent on Sr and Fe content in a wide concentration range $0 \leq x \leq 0.3$ and $0 \leq y \leq 0.1$. This enables us to elaborate a systematic dependence of the ESR results on the hole concentration $p = x - y$ and to show that the Cu-spin fluctuations are the dominant relaxation bath for the Fe-spin.

2. Sample Preparation and Characterization

Polycrystalline samples of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{4-\delta}$ were prepared by solid-state reaction from the oxides La_2O_3 , SrCO_3 , CuO , and Fe_2O_3 in a concentration range $0 \leq x \leq 0.34$ and $0 \leq y \leq 0.1$. Stoichiometric amounts of the starting materials were homogeneously mixed, ground in a mortar, and prereacted in an Al_2O_3 crucible at 258

950°C in air for 8 hours. Then the material was repeatedly powdered, pressed into pellets, and annealed in oxygen stream at 1150°C for 40 minutes. The forth annealing was done for 57 hours and followed by additional 72 hours at 500°C in oxygen stream. This forth step was immediately repeated and then the samples were subtracted from the oven. X-ray powder diffraction confirmed the proper K_2NiF_4 structure, and additional microprobe analysis revealed a good homogeneity of the samples. The oxygen stoichiometry δ was checked in the iron-free samples by means of iodometric titration. As result we found a slight oxygen surplus of $0 < \delta < 0.02$ for $x \leq 0.18$ and a deficiency $-0.03 < \delta < 0$ for $x \geq 0.2$. The resistivity of the iron-free samples was found in good agreement with literature data [24], revealing superconductivity for $0.06 \leq x < 0.33$ with a maximum $T_c(x=0.15) \approx 37$ K. Already 2-3% Fe are enough to suppress the superconductivity. The general effect of the Fe substitution on the conductivity is characterized by the fact that trivalent iron annihilates the holes created by divalent strontium. The conductivity at room temperature exhibits a linear decrease on increasing Fe concentration at a given Sr concentration [11]. Comparison of three sets $x = 0.1, 0.2$, and 0.3 reveals a similar conductivity for the same effective charge-carrier density $p = x - y$. Thus the presence of the Fe^{3+} impurities has no additional influence on the scattering of the holes. To explain this, it seems to be reasonable that the additional charge of Fe^{3+} with respect to Cu^{2+} leads to a strong binding of the electrons in the neighboring oxygen p orbitals that these orbitals cannot be occupied by holes any more. This hypothesis will be corroborated by the ESR results described below.

3. Experimental

The electron-spin resonance (ESR) experiments were performed with a VARIAN E-101 spectrometer working at a microwave frequency of 9.3 GHz. ESR measures the power absorption P from the transverse magnetic microwave field dependent on the static magnetic field H . To improve the signal-to-noise ratio the spectra are recorded as the field derivative dP/dH by lock-in technique with 100 kHz field modulation. The magnetic field was controlled by a temperature-stabilized Hall probe (Bruker). For cooling a continuous-flow He cryostat (Oxford Instruments) was used allowing for temperatures $4.2 \leq T \leq 300$ K.

For the ESR measurements, the polycrystalline samples were powdered to grains as fine as possible to avoid the skin effect. Defined amounts of the powder (20-30 mg) were filled into suprasil quartz-glass tubes and fixed with paraffin. The knowledge of the mass under investigation was necessary for a direct comparison of the signal intensities. For samples which are superconductors, it was not possible to record ESR spectra for $T < T_c$ due to the very strong noise near the superconducting transition and the general broadening of the ESR lines at low temperature.

4. Results and Discussion

4.1. Identification of Fe and Cu signals

In Mn-doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ it was possible to obtain a satisfactory fit for the Mn-spectra by a single Lorentzian line [12]. The strong superexchange between Mn and Cu prevents the appearance of any fine- or hyperfine structure in the line. The substantial fit parameters were the linewidth ΔH and the resonance field H_{res} . This procedure is not successful any more in the case of the Fe-doped samples. In most cases we need the superposition of two Lorentzian lines with very similar resonance fields H_1 and H_2 near a g -value of $g = 2$, but with different linewidths ΔH_1 and ΔH_2 (here we use the full width at half maximum – FWHM – linewidth) for an appropriate fit of the ESR spectra:

$$P(H) \propto \sum_{i=1,2} \frac{\Delta H_i / 2 + \alpha(H - H_i)}{(H - H_i)^2 + (\Delta H_i / 2)^2} + \frac{\Delta H_i / 2 + \alpha(H + H_i)}{(H + H_i)^2 + (\Delta H_i / 2)^2}. \quad (1)$$

Due to the large linewidth we have to take into account both circular components ($\pm H_i$) of each resonance. Although we use powdered samples, the skin effect can give rise to small contributions ($\alpha \ll 1$) of dispersion to the absorption signal [14].

Fig. 1 shows such a typical ESR spectrum. The center of the signal is strongly disturbed by the well-known narrow Cu-oxygen-hole resonance [23]. We could minimize this spurious signal by a very careful sample preparation, but nevertheless, it was always observable. That is why we ignored the central part of the line for the fitting procedure. The remaining spectrum consists of a narrower line (dotted), which we will identify with the iron signal, and a broader resonance (dash line), which will turn out to originate from the Cu-spin system.

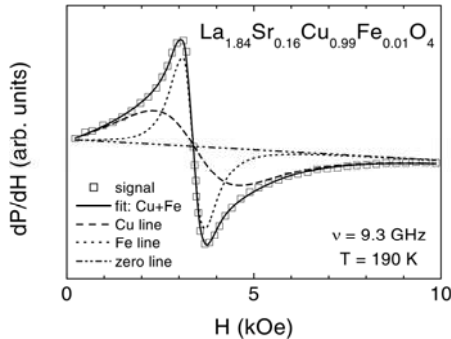
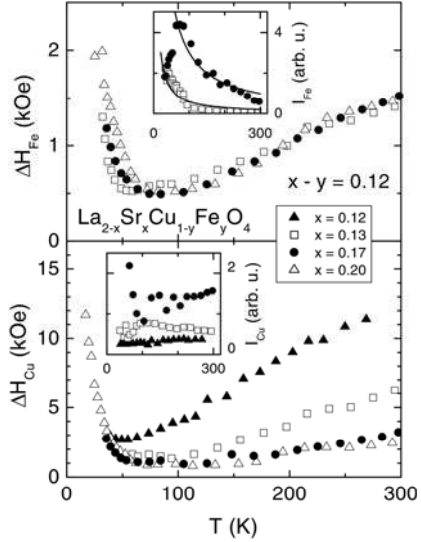


Fig. 1. Typical ESR spectrum as observed in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$. The fit by two resonance lines is discussed in the text

Fig. 2. Temperature dependence of linewidth and intensity (insets) for the resonance lines of iron (upper frame) and copper (lower frame) for a set of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ with constant hole concentration $p = x - y$. The solid lines in the upper inset indicate Curie laws of the Fe intensities

Fig. 2 gives an overview of the results obtained within a series of samples with a constant hole concentration and enables us to assign the two resonance lines unambiguously to Fe and Cu. In the lower frame the linewidth of the broader line is depicted. This broad signal is visible even in the sample without iron doping. Besides an upturn to low temperatures all data increase linearly with increasing temperature above 100 K, but the slope strongly decreases with increasing iron content y and remains constant for $y \geq 0.05$. The inset shows the corresponding intensities, which have been obtained as $I \propto A\Delta H^2$, where A denotes the amplitude of the derivative dP/dH . The skin effect can be neglected here, because the dispersion contribution is always found to be $\alpha \propto 1$, i.e. the skin depth is large compared to the grain size. The intensities, which represent the local spin susceptibilities, all are approximately temperature independent above 60 K, (the intensities of the sample with $y = 0.08$ have been omitted because of strong scattering of the data). Such a Pauli-like spin susceptibility has also been observed in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ single crystals and has been explained as intrinsic Cu-ESR line, where a three-spin magnetic polaron in the CuO_2 plane is regarded as the active ESR center [7,8]. In addition, the temperature dependence of the linewidth observed in the undoped polycrystal is – although shifted to higher values – in satisfactory agreement with the linewidth of the single crystal as well. Hence, we can assign the broad component of the ESR spectra to the intrinsic Cu signal.

The upper frame of Fig. 2 shows the same quantities for the narrower line, which is only present in the iron doped samples. Qualitatively, the temperature dependence is similar to that observed for the Cu signal, but the data nearly coincide for all values of y . This is a strong hint that for iron the hole concentration p is the decisive parameter, as will be discussed in detail below. The intensities, shown in the inset, follow quite well a Curie behavior indicated by the solid lines. Such a spin susceptibility is expected for localized magnetic impurities



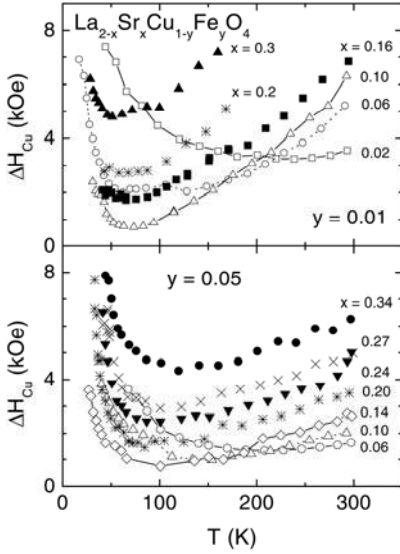


Fig. 3. Temperature dependence of the copper linewidth for two sets of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ with 1% Fe (upper frame) and 5% Fe (lower frame). The lines are drawn to guide the eye

and, therefore, clearly identifies the Fe spins as the corresponding magnetic centers. The suppression of the intensity, which is observed below 80 K for higher Fe doping and which is accompanied by an increase of the Cu intensity, probably results from strong antiferromagnetic correlations with the surrounding Cu spins.

4.2. Cu and Fe linewidth

Having identified the magnetic centers of the two ESR lines in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ we turn now to the detailed investigation of the linewidth dependence on the composition

parameters x and y . Figs. 3 and 4 summarize the results obtained for 1%- and 5%-Fe doped samples in the full Sr-concentration range under consideration for the Cu resonance as well as for the Fe resonance. In general, all data show a similar topology with a monotonous increase to high temperatures, a strong broadening to low temperatures, and a minimum in between.

Starting with the copper resonance in samples of 1% Fe doping, which is shown in the upper frame of Fig. 3, its temperature dependence is qualitatively comparable to that observed in both poly- and single crystals of the iron-free compounds [7,8]. With increasing Sr concentration x the slope b_{Cu} of the linear high-temperature regime increases up to $b_{\text{Cu}} \approx 28$ Oe/K at $x = 0.1$ (as compared to

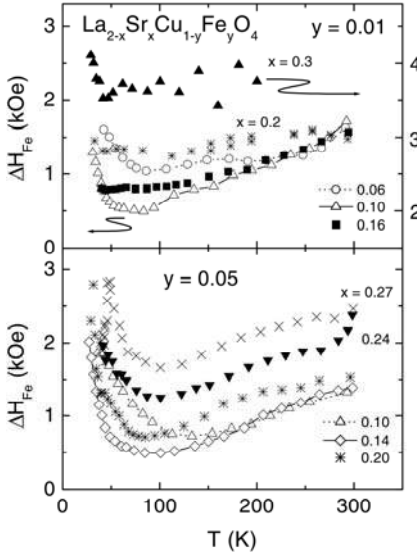


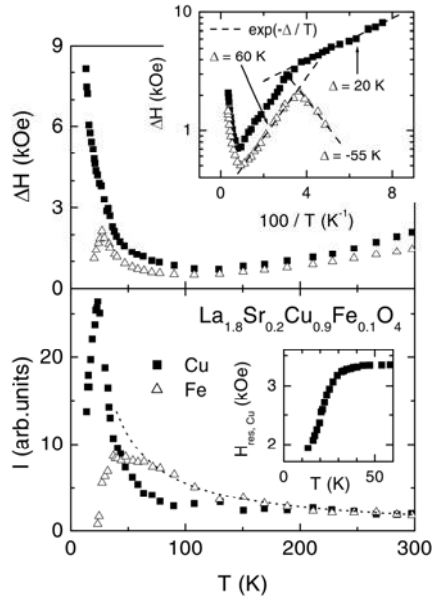
Fig. 4. Temperature dependence of the copper linewidth for two sets of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ with 1% Fe (upper frame) and 5% Fe (lower frame). The lines are drawn to guide the eye. The right-hand axis of the upper frame is valid for $x = 0.3$

$b_{\text{Cu}}(x = 0.1) \approx 40$ Oe/K for the iron-free sample) and remains nearly unchanged for higher x . At the same time, all data for $x > 0.1$ exhibit a parallel shift to higher linewidth values, which increases with increasing Sr concentration. The iron resonance of the 1% Fe-doped series, which is shown in the upper frame of Fig. 4, first also evolves a linear increase at high temperatures of about $b_{\text{Fe}} \approx 6$ Oe/K for $x = 0.1$. But with further increasing Sr concentration the slope is gradually suppressed and vanishes completely at $x = 0.3$, whereas the all-over value of the linewidth increases strongly.

Now we focus on the series with 5% Fe doping. Again the Cu resonance, shown in the lower frame of Fig. 3, evolves a linear high-temperature regime with increasing Sr concentration, but its slope remains at $b_{\text{Cu}} \approx 11$ Oe/K for $x \geq 0.14$. Like in the case of 1% Fe doping all data for $x \geq 0.14$ reveal the increasing parallel shift with increasing x . The Fe-linewidth obtained for $y = 0.05$ is depicted in the lower frame of Fig. 4. Its behavior is now quite similar to that of the Cu resonance, but the absolute values of the linewidth are about a factor of 2 smaller than for the copper signal.

For higher Fe concentrations the linewidths of Fe and Cu signal are fully correlated above $T \approx 30$ K, as one can see for example in Fig. 5 for $\text{La}_{1.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Cu}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_4$. For $30 < T < 130$ K the logarithmic plot of ΔH_{Cu} and ΔH_{Fe} versus the inverse temperature reveals an exponential dependence $\exp(-\Delta/T)$ with $\Delta \approx 60$ K for both quantities. Below 29 the Cu linewidth increases further exponentially with $\Delta \approx 20$ K, whereas the Fe linewidth decreases with approximately the same slope in logarithmic representation like above 29 K, but with negative sign. At the same time the Cu-resonance field strongly shifts to lower fields with decreasing temperature down to 2 kOe at 14 K, where the signal becomes undetectable. At the temperature, where the correlation breaks, the Cu intensity exhibits a pronounced peak. The Fe intensity follows a Curie-law at high temperatures but reveals a broad

Fig. 5. Temperature dependence of Fe and Cu linewidth (upper frame, inset: ΔH as function of inverse temperature) and Fe and Cu intensity (lower frame) in $\text{La}_{1.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Cu}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}\text{O}_4$. The dotted line indicates a Curie law for the Fe intensity. Inset: low-temperature resonance field for the Cu signal



maximum around 50 K and vanishes at about 20 K, probably due to the antiferromagnetic coupling to the Cu neighbors.

4.3. Analysis

In metallic compounds with localized magnetic moments the probing spin can relax both via the mobile charge carriers and via the spin fluctuations of the localized moments. The first process is the well-known Korringa relaxation giving rise to a linear temperature dependence [14]

$$\Delta H_K = bT \quad (2)$$

with the slope $b \propto N^2(E_F)$ proportional to the squared density of states N at the Fermi energy (E_F). The second process, which is mediated via super-exchange or RKKY-like interactions, contributes as [25]

$$\Delta H_f \propto \frac{T}{\omega} \chi_f''(\mathbf{Q}, \omega) \quad (3)$$

with the imaginary part of the dynamic susceptibility $\chi_f''(\mathbf{Q}, \omega)$ of the fluctuating spin system. Neglecting the dependence on the momentum transfer $\mathbf{Q}$ and using a purely relaxational ansatz the frequency dependence can be approximated as

$$\chi_f''(\omega) = \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \chi_0 \quad (4)$$

with the spin-correlation time τ and the static spin susceptibility χ_0 . For correlation times τ short as compared to the inverse probing frequency $1/\omega$, i. e. $\omega\tau \ll 1$ this results in

$$\Delta H_f \propto T \chi_0 \tau \quad (5)$$

which yields a measure for the spin-correlation time, as the static susceptibility is known.

Based on these fundamental relations, we analyze the complex spin dynamics in iron doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. The fluctuating system ($\chi_f(\mathbf{Q}, \omega)$) of localized moments has to be identified with the entire Cu^{2+} -spin system, which cannot be detected directly by ESR experiments because of the relaxation processes being too fast [6]. The mobile charge carriers are the holes induced by Sr^{2+} substitution for La^{3+} . Beside the Fe^{3+} ESR probes there are the Cu-spin polarons with properties strongly related to the entire Cu system. The polaron signal has been discussed in detail [8,27] for the pure compound, where it behaves very similar to the 1% Fe-doped samples (cf. upper frame in Fig. 3). Although several reasons for the high-temperature behavior of the linewidth are under

debate, it seems reasonable to assume a Korringa-like relaxation of the polarons to the mobile holes as the dominant mechanism. This is supported by the evident similarity of the concentration dependence of the square-root of the high-temperature slope in $\Delta H(T)$ and the averaged electronic density of states at the Fermi energy determined by optical reflectivity [28]. This mechanism is also consistent with the additional influence of the iron, as we will explain immediately.

Fig. 6 summarizes the high-temperature behavior of both Cu and Fe linewidth obtained at room temperature as a function of the hole concentration $p = x - y$. For iron the linewidth shows a monotonous increase with increasing hole concentration, independent on the specific Sr : Fe ratio (cf. also Fig. 2). Interestingly the slope of this increase exhibits an abrupt change near the optimal doping concentration ($p = 0.15$), where the highest T_c is reached for $y = 0$. Taking into account that at high temperatures the Fe linewidth increases approximately linear with temperature in most of the samples under investigation, at first glance the T -linear increase of ΔH_{Fe} could be interpreted as Korringa broadening via scattering at the charge carriers, which should be the same for all samples with the same charge-carrier concentration p . The copper linewidth also monotonously increases with p at a given iron content y , as indicated by the open triangles ($y = 0.01$) and circles ($y = 0.05$), but it exhibits an additional strong pronounced dependence on y itself, as one can see from the series of constant Sr contents ($x = 0.1, 0.2$, and 0.3), which are connected via the dash lines. The strong decrease of ΔH_{Cu} , in spite of constant p but with increasing y , shows that the Fe ions obviously provide a reduction of the number of mobile charge carriers. In particular at the borderline $x = 0.1/0.2$ for $p = 0.1$ or at $x = 0.2/0.3$ for $p = 0.2$, there is always a prominent broadening on the side of low Fe concentration, whereas on the side of high Fe concentration the lines are much narrower. Hence, we conclude that the Fe^{3+} ions act as localization centers for the mobile charge carriers, i.e. the number of those is reduced with larger Fe concentration. This assumption is also supported by the Cu-linewidth data in

Fig. 6. Dependence of the room-temperature linewidth on hole concentration $p = x - y$ for $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ for the copper signal (upper frame - dotted lines connect data points of $y = \text{const}$, dash lines connect series of $x = \text{const}$) and the iron signal (lower frame - solid lines indicate the different slope below and above $p = 0.15$)

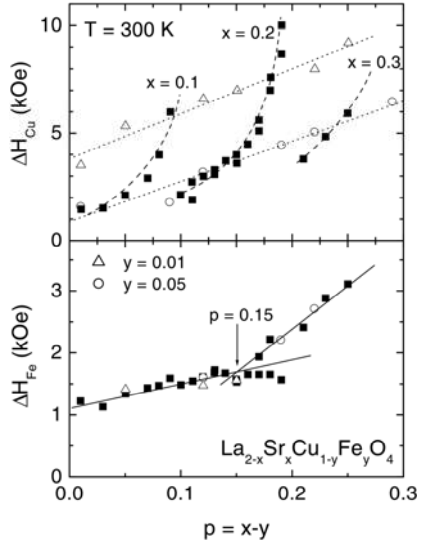


Fig. 2, where the samples with the higher y -values show the smaller Korringa slope at high temperatures. It is important to note that no such localization effects are visible in ΔH_{Fe} . It seems that the charge carriers (holes in the oxygen p -orbitals) are hardly scattered by the Fe^{3+} ions. The evolution of $\Delta H_{\text{Fe}}(y=0.01)$ with increasing x reveals just the opposite behavior than ΔH_{Cu} , i.e. the Korringa-like increase visible for $x=0.1$ becomes completely suppressed up to $x=0.3$, where a large temperature-independent linewidth is observed. This is in contradiction to the Korringa relaxation at all, as we know that the electronic density of states is approximately constant for $0.1 < x < 0.3$ [28]. Therefore the Korringa process can be ruled out for the line broadening of the Fe resonance, which is consistent with the resistivity results described above, where the conductivity was only dependent on p but not affected by the presence of Fe^{3+} as additional scattering center.

Without Korringa scattering, the relaxation of the iron spins should be fully determined by the dynamic susceptibility of the copper-spin system. Hence, we try to evaluate the linewidth data in terms of Eq. 5 now. The static copper susceptibility is approximately constant in temperature. Then a linear increase of $\Delta H_{\text{Fe}}(T)$ with increasing temperature indicates a temperature-independent spin-correlation time $\tau = \text{const}$, whereas a temperature-independent linewidth yields a $\tau(T) \propto 1/T$ behavior. In the latter case, the spin fluctuations follow the so called ω/T scaling, which has been observed for $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ by neutron-scattering experiments e.g. for $x=0.02$ [30], $x=0.04$ [29], $x=0.07$ [31], and $x=0.14$ [32].

Regarding the high-temperature behavior of $\Delta H_{\text{Fe}}(T)$ for $y=0.01$ in the upper frame of Fig. 4, the temperature-independent linewidth, which indicates ω/T scaling of the copper-spin fluctuations, is approached above $x > 0.1$. For lower Sr concentrations, the linear high-temperature increase indicates temperature-independent spin fluctuations, which seem to be in contradiction to the neutron-scattering results. However, this can be understood in terms of the localization effect: The Fe^{3+} ion repels the holes and, therefore, reduces the coupling of the holes with the neighboring Cu^{2+} spins. The missing interaction with the charge carriers obviously yields a temperature-independent spin-correlation time of these copper spins. As the iron spin primarily couples to its nearest copper neighbors, these fluctuations, which do not follow the ω/T scaling, dominate its relaxation behavior at low Sr concentration x . With increasing x this localization effect for the copper spins, which surround the Fe^{3+} ion, is overcome by the increasing number of mobile holes, resulting in the temperature independent linewidth.

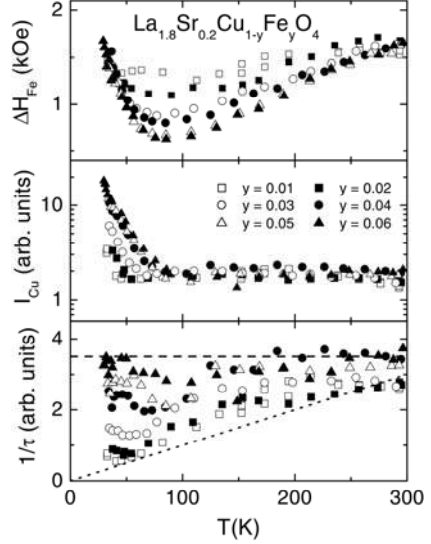
So far we can explain the asymptotic high-temperature behavior of the iron linewidth by the copper-spin fluctuations and localization of holes. Now we will extend our approach to the full temperature range, as the simultaneous observation of iron and copper resonance allows to extract the spin-correlation time τ as a

Fig. 7. Temperature dependence of the Fe linewidth (upper frame) Cu intensity (middle frame) and inverse spin fluctuation time (lower frame) for $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$

function of temperature. This has been done in Fig. 7 for $\text{La}_{1.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ with $0.01 \leq y \leq 0.06$, which shows the iron linewidth ΔH_{Fe} in the upper frame and the corresponding intensity I_{Cu} of the Cu-polaron signal in the middle frame. The inverse spin-correlation time, shown in the lower frame, was determined assuming I_{Cu} as proportional the spin susceptibility of the entire Cu system. This yields a very reasonable result. For low Fe concentration y we obtain an approximately linear dependence $1/\tau \propto T$, indicative for spin fluctuations following the ω/T scaling, which gradually changes into the $(1/\tau = \text{const})$ behavior with increasing y , when the localization becomes dominant.

This analysis shows that Eq. 5 even correctly describes the line broadening at low temperatures, where the Cu-intensity strongly increases. The increase of the Cu intensity can be understood from the ferromagnetic polarization of the Cu spins by the interaction with the holes [33]. The transition from itinerant to localized holes yields an amplification of the ferromagnetic polarization and hence of the local Cu susceptibility. The localization mechanism is further supported by the exponential temperature dependence of both Fe and Cu linewidth as indicated in Fig. 5. In pure La_2CuO_4 the temperature dependence of the linewidth can be related to the exponential temperature dependence of the correlation length of the Cu-spin fluctuations [4]. However, this model fails for the Sr-doping regime of the metal-to-insulator transition, because here a temperature-independent correlation length was found by neutron-scattering experiments [29]. Considering the hole localization, the ferromagnetic polarization of the Cu spins is connected with the duration time, which the hole resides in a localized orbital. The thermal activation of the holes results in the exponential temperature dependence of the local Cu susceptibility and in turn of the linewidth of Fe and Cu-polaron signal.

The behavior below the peak in the Cu intensity at 29 K is difficult to interpret. Probably the peak can be identified with the transition into the spin-glass phase [17]. This is also supported by the strong shift of the Cu resonance below 29 K. Here the hopping motion of the holes freezes and only tunneling processes



with lower activation energy take place, resulting in the change of the slope in the logarithmic plot of the Cu linewidth. The Cu intensity reduces due to local antiferromagnetic order of the Cu spins. This opens a gap in the spin-fluctuation spectrum, which decouples the relaxation of the Fe signal resulting in the observed decrease of the Fe linewidth.

With a nearly symmetric shape in the $1/T$ representation, the peak in the Fe linewidth reminds to the characteristics of a Bloembergen-Purcell-Pound (BPP) mechanism. From NMR experiments this is known to appear in the nuclear spin-lattice relaxation rate $1/T_1$, if the fluctuation rate slows down on lowering the temperature and, thereby, crosses the experimental frequency[34]. Indeed the BPP mechanism was suggested to explain the NMR-relaxation rate $1/T_1$ of ^{139}La in $\text{La}_{1.67}\text{Eu}_{0.2}\text{Sr}_{0.13}\text{CuO}_4$, which exhibits a slightly asymmetric peak near 9 K [35]. Additionally, a slowing down of the antiferromagnetic dynamics has been reported from Gd^{3+} -ESR experiments in $\text{La}_{1.65}\text{Gd}_{0.01}\text{Eu}_{0.24}\text{Sr}_{0.1}\text{CuO}_4$, where the fluctuation frequencies have been found to decrease from 10^{12} Hz by three orders of magnitude below 50 K [36], i.e. the approximation used to derive Eq. 5 is not valid any more at lowest temperatures. More systematic ESR investigations at different probing frequencies and accompanying ^{139}La -NMR measurements on the same samples are necessary to characterize the low-temperature behavior in detail.

5. Summary

By a careful analysis of the ESR line shape of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{4-\delta}$ we could separate the Fe and the Cu resonances. There is no Korringa broadening in the Fe resonance. Its broadening in the temperature range $80 \leq T \leq 300$ K is only caused by fluctuations in the Cu-bath. The Cu-bath exhibits two components of spin fluctuations - one with a temperature-dependent ($\tau \propto 1/T$) and the other with a temperature-independent correlation time, where the second one characterizes the Cu spins in the direct neighborhood of the Fe spin. The addition of Fe^{3+} ions favors a localization of the charge carriers. The exchange between the Fe and the Cu system is obviously not strong enough to establish a bottleneck effect like in Mn-doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Normally, the ESR of $3d$ -ions in metals is only observable in the bottleneck regime. It seems that $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ forms the first exception from this rule, probably due to the weak coupling with the charge carriers. From our investigations we infer that $p = x - y$, i.e. the number of charge carriers is a crucial parameter to compare the various experimental results.

6. Acknowledgments

We thank Prof. Dr. B. I. Kochelaev for many useful discussions. This work is supported by the German Bundesministerium für Bildung und Forschung under the contract No. VDI/EKM 13N6917 and by the Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) via the Sonderforschungsbereich SFB 484 (Augsburg).

References

1. G. Bednorz and K.A. Müller, Z. Phys. B: Condens. Matter **64**, 189 (1986).
2. M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, Rev. Mod. Phys. **70**, 1039 (1998).
3. T. Moriya and K. Ueda, Rep. Prog. Phys. **66**, 1299 (2003).
4. S. Chakravarty and R. Orbach, Phys. Rev. Lett. **64**, 224 (1990).
5. A.V. Lazuta, Physica C **181**, 127 (1991).
6. B.I. Kochelaev, J. Supercond. **12**, 53 (1999).
7. J. Sichelschmidt, B. Elschner, and A. Loidl, Physica B **230-232**, 841 (1997).
8. B.I. Kochelaev, J. Sichelschmidt, B. Elschner, W. Lemor, and A. Loidl, Phys. Rev. Lett. **79**, 4274 (1997).
9. J. Sichelschmidt, B. Elschner, A. Loidl, and K. Fischer, Z. Phys. B: Condens. Matter **93**, 407 (1994).
10. J. Sichelschmidt, B. Elschner, A. Loidl, and B. I. Kochelaev, Phys. Rev. B **51**, 9199 (1995).
11. B. Elschner and A. Loidl, in *Handbook of the Physics and Chemistry of Rare Earth*, edited by K. A. Gschneidner jr., L. Eyring, and M. B. Maple (Elsevier Science, Amsterdam, 2000), Vol. 30, p. 375.
12. B.I. Kochelaev, L. Kan, B. Elschner, S. Elschner, Phys. Rev. B **49**, 13106 (1994).
13. A. Shengelaya, H. Keller, K.A. Müller, B.I. Kochelaev, K. Conder, Phys. Rev. B **63**, 144513 (2001); J. Supercond. **13**, 955 (2000).
14. S.E. Barnes, Adv. Phys. **30**, 801 (1981).
15. A. Sienkiewicz, M.Z. Cieplak, G. Xiao, and C.L. Chien, J. Less Common Metals **164&165**, 870 (1990).
16. M. Coldea, Physica C **185-189**, 1197 (1991).
17. M.Z. Cieplak, A. Sienkiewicz, F. Mila, S. Guha, G. Xiao, J.Q. Xiao, and C.L. Chien, Phys. Rev. B **48**, 4019 (1993).
18. J. Arai, T. Nitta, and N. Mori, Physica C **235-240**, 1649 (1994).
19. A.D. Shengelaya, J. Olejniczak, and H. Drulis, Physica C **233**, 124 (1994).
20. J. Arai, K. Kojima, and N. Mori, J. Low Temp. Phys. **105**, 455 (1996).
21. I. Felner, J. Gersten, A. Minakov, M. Merzlyakov, and Yu. Bugoslavsky, Physica C **261**, 207 (1996).
22. A.D. Shengelaya, J. Olejniczak, H. Drulis, and N.M. Suleimanov, Solid State Commun. **99**, 779 (1996).
23. J. Stankowsky, W. Hilczner, J. Baszynski, B. Czyzk, and L. Szczepanka, Solid State Commun. **77**, 125 (1991).
24. H. Takagi, T. Ido, S. Ishibashi, M. Uota, S. Uchida, and Y. Tokura, Phys. Rev. B **40**, 2254 (1989).
25. M. Coldea, H. Schäffer, V. Weissenberger, and B. Elschner, Z. Phys. B: Condens. Matter **68**, 25 (1987).
26. G. Kruschel, Ph.D.Thesis, TU Darmstadt (1993).
27. J. Sichelschmidt, Ph.D.Thesis, TU Darmstadt (1997).

28. S. Uchida, T. Ido, H. Takagi, T. Arima, Y. Tokura, and S. Tajima, Phys. Rev. B **43**, 7942 (1991).
29. B. Keimer, N. Belk, R.J. Birgenau, A. Cassanho, C.Y. Chen, M. Gervin, M.A. Kastner, A. Aharony, Y. Endoh, R.W. Erwin, and G. Shirane, Phys. Rev. B **46**, 14034 (1992).
30. M. Matsuda, R.J. Birgenau, Y. Endoh, Y. Hidaka, M.A. Kastner, K. Nakajima, G. Shirane, T.R. Thurston, and K. Yamada, J. Phys. Soc. Jpn. **62**, 1702 (1993).
31. H. Hiraka, Y. Endoh, M. Fujita, Y.S. Lee, J. Kulda, A. Ivanov, and R.J. Birgenau, J. Phys. Soc. Jpn. **70**, 853 (2001).
32. G. Aeppli, T.E. Mason, S.M. Hayden, H.A. Mook, and J. Kulda, Science **278**, 1997 (1997).
33. A. Aharony, R.J. Birgenau, A. Coniglio, M.A. Kastner, and H.E. Stanley, Phys. Rev. Lett. **60**, 1330 (1988).
34. N. Bloembergen, E.M. Purcell, and R.V. Pound, Phys. Rev. **73**, 679 (1948).
35. B.J. Suh, P.C. Hammel, M. Hücker, B. Büchner, U. Ammerahl, and A. Revcolevschi, Phys. Rev. B **61**, 9265 (2000).
36. V. Kataev, B. Rameev, B. Büchner, M. Hücker, and R. Borowski, Phys. Rev. B **55**, 3394 (1997).

TO THE NATURE OF IRREVERSIBILITY IN LINEAR SYSTEMS

R.R. Nigmatullin¹, A. Le Mehaute²

¹ *Kazan State University, 420008 Kazan, Russia*

² *Institute Supérieur des Matériaux du Mans, 72000 Le Mans – France*

New scenario of irreversibility for linear systems has been found and discussed. This scenario is based on the interpretation of the geometrical/physical meaning of the temporal fractional integral with complex and real fractional exponents. It has been shown that imaginary part of the fractional integral related to *discrete-scale invariance* (DSI) phenomenon and observed only for *true* regular (discrete) fractals. Numerical experiments show that the imaginary part of the complex fractional exponent can be well approximated by simple and finite combination of the leading sine/cosine log-periodical functions with period $\ln \xi$ (ξ is a scaling parameter). In the most cases analyzed the leading Fourier components give a pair of complex conjugated exponents defining the imaginary part of the complex fractional integral. For random fractals, where invariant scaling properties are realized only in the statistical sense the imaginary part of the complex exponent is *averaged* and the result is expressed in the form of the conventional Riemann-Liouville integral. The conditions for realization of reind and recaps elements with complex power-law exponents have been found. The fractal structures leading to pure log-periodic oscillations related to fractional integration with complex exponent are analyzed. Description of relaxation processes by kinetic equations containing complex fractional exponent and their possible recognition in the dielectric spectroscopy is discussed.

1. Introduction

As it is known [1], all equations describing the kinetic stage of evolution should have clearly expressed irreversibility with respect to the temporal variable t . This inherent irreversible property should be derived from the basic reversible equation for density matrix (Liouville equation). The correct procedure of such deduction is reduced to some decoupling procedure as it is done usually in the Mori-Zwanzig formalism [2] or to the procedure of the reduced description based on the hypothesis of an intermediate local equilibrium. The last hypothesis is the basic one in the Zubarev's formalism for nonequilibrium statistical operator [3]. But these two procedures are rather approximate and not well justified.

Now it is becoming clear that for *nonlinear* systems a natural scenario of transition from reversible systems to irreversible ones should use the dynamical chaos conceptions [4]. For linear systems the well-justified correct procedure for creation of a *kinetic scenario* from the initial reversible equations is *absent*. In our opinion, this procedure for wide class of dynamical systems should include a

formalism of the fractional calculus [5]. As it is well-known, the non-integer fractional operators of differentiation and integration have the property of the *partial* irreversibility or, in other words, the property of the 'remnant' memory considered in [6]. So, the problem of correct deduction of the fractional integral from usual integer integration operation is appeared.

Recently much attention has been paid to existence of equations containing *real* fractional exponent [7-9]. Now it becomes evident that equations with fractional derivatives will play a crucial role in description of kinetic and transfer phenomena in mesoscale region. As it was already discussed in paper [10] the frontiers of science are rapidly shifting from the investigation of the basic bricks of matter to the elucidation of mesoscopic principles of its organization. Moving in this way we need a mathematical apparatus, which adequately corresponds to a true description of *kinetic properties* of a matter on mesoscale region. From our point of view this necessary mathematical instrument should lie in deep understating of the 'physics' of the fractional calculus. The first attempt to understand the result of averaging of a smooth function over the given fractal (Cantor) set has been undertaken in [7]. In the note [11] and later in paper [12] some doubts were raised to the reliability of the previously obtained result. The criticism expressed in these publications forced the author (RRN) to reconsider the former result, and the detailed study of this problem showed that the doubts had some grounds and were directly linked with the relatively delicate questions of averaging a smooth function over fractal sets, in particular, on Cantor set and its generalizations. But we cannot agree with final conclusion made in [12]: "no direct relation between fractional calculus and the fractals has been established yet".

In order to dissipate these doubts and realize mathematically correct averaging procedure over fractal sets it was necessary to carry out a special study. This investigation has been given in the book [8], where the correct averaging procedure was considered in detail. The further generalization for more general Cantor sets has been realized in papers of Prof. Fu-Yao Ren with co-authors [13-15]. Another approach leading to the fractional integral and related to coarse graining time averaging is considered in the recent book [16]. Independent analysis of above-cited papers could lead to a conclusion that the physical meaning of the fractional integral with *real* exponent has been understood. Temporal fractional integral can be interpreted as a conservation of part of states localized on a self-similar (fractal) object if the physical system considered has at least two parts of different states. One part is distributed *inside* a fractal set (the conserved part of states) and another part of states is located *outside* of the fractal set (the lost part of states). That's why it is easy to understand the fractional integral of one-half order, when for its understanding any fractal object is not necessary. Half of states is lost automatically in diffusion process with semi-infinite boundary conditions [8]. From the geometrical point of view the temporal fractional integral is associated with Cantor set or its generalizations, occupying

an intermediate position between the classical Euclidean point and continuous line. But the meaning of fractional integral with real fractional exponent is *not* complete in the light of recent papers [10], [17-20], where the correct understanding of different self-similar objects with *complex* fractal dimension is discussed. These interesting ideas forced the authors of this paper to reconsider their previous results obtained in [8] and gave a possibility to understand the geometrical/physical meaning of mathematical operator with *complex* fractional exponent. So the basic question, which we are going to consider and discuss in this paper, can be formulated as follows: *how to come to understanding of fractional integral with complex fractional exponent through the correct averaging procedure of a smooth function over the temporal fractal set?* We are going to show that details of averaging procedure developed in [8] will help us to find the answer formulated in the title of this paper.

The following content of this article obeys the next structure. In the Section 2 we present the basic details of the averaging procedure including some new generalizations, which are absolutely necessary for further understanding. In Section 3 following to the basic ideas of the scale-invariance objects with complex fractal dimension we justify the geometrical/physical meaning of imaginary part of the complex fractional exponent. In this section the results of numerical calculations are also given. They are important in understanding of the imaginary part of the complex fractional exponent. We found also geometrical structures leading to a 'pure' fractional integration containing *only* an imaginary part of the complex exponent. This investigation (considered in Section 4) helps to introduce passive two-pole elements with *complex* fractional exponent, realizing the fractional integration/differentiation operation in time domain. The last Section 4 includes also a brief consideration of kinetic equations containing complex fractional exponent. The basic results are collected and discussed in the final Section 5.

2. Procedure of averaging of a smooth function over the given fractal set

2.1. Binary Cantor set and the temporal fractional integral

Let us suppose that a physical value $J(t)$ is related with a smooth function $f(t)$ by means of convolution operation

$$J(t) = K(t) * f(t) = \int_0^t K(t-\tau) f(\tau) d\tau, \quad (1)$$

where the function $K(t)$ is determined on the segment $[0, T]$ and can be expressed by using of the conventional step-function

$$K(t) = \frac{1}{T} [\kappa(t) - \kappa(t-T)]. \quad (2)$$

Here

$$\kappa(t) = \begin{cases} 1, & t > 0 \\ 0, & t < 0 \end{cases} \quad (3)$$

is the conventional Heaviside unit function. The constant $1/T$ in (2) appears as the result of the normalization of all states covered by the function $K(t)$ to the unit value

$$\int_0^T K(t) dt = 1. \quad (4)$$

Laplace-image of $K(t)$ with the use of retardation theorem

$$f(t-a) \stackrel{LT}{=} \exp(-pa) f(p), \quad (5)$$

takes the form

$$K(t) \stackrel{LT}{=} K(p) \equiv \int_0^\infty K(t) \exp(-pt) dt = \frac{1 - \exp(-pT)}{pT}. \quad (6)$$

Here and below the symbol $\stackrel{LT}{=}$ means that the left and right side functions are related to each other by the conventional Laplace transform.

In order to find the kernel $K_{T,\nu}^{(N)}(t)$ on the N th stage of the Cantor binary set construction, having fractal dimension $\nu = \ln 2 / \ln(1/\xi)$ and concentrated on the interval $[0, T]$, it is necessary to write the recurrence relation directly for the kernel $K_{T,\nu}^{(N)}(t)$ which coincides with the normalized density of the binary set

$$K_{T,\nu}^{(N)}(t) = \frac{1}{2} \left[K_{\xi T, \nu}^{(N-1)}(t) + K_{\xi T, \nu}^{(N-1)}(t - (1 - \xi)T) \right]. \quad (7)$$

Here $K_{T,\nu}^{(0)}(t) \equiv K(t)$ defined by (2). The height of each Cantor ‘stripe’ on the N th stage is equaled to $1/(2\xi)^N T$ and provides the conservation of normalization to the unit on each stage of its construction.

In recurrence relation (7) and below the parameter ξ is the scaling factor, which shows the ‘degree of compressing’ ($\xi < 1$) of binary set on each stage of its construction. The values of ξ lie in the interval $[0, 1/2]$. Now we are ready to find the answer for the following concrete question:

What is the result of the convolution of the function $f(t)$ with the normalized density $K_{T,\nu}^{(N)}(t)$ in the limit $N \rightarrow \infty$, i.e

$$J(t) = \lim_{N \rightarrow \infty} J_N(t) = \lim_{N \rightarrow \infty} \left(K_{T,\nu}^{(N)}(t) * f(t) \right) = \left(K_{T,\nu}(t) * f(t) \right)? \quad (8)$$

Here and below $K_{T,\nu}(t)$ is the limiting value of $K_{T,\nu}^{(N)}(t)$. For further investigations of the last expression (8) it is convenient to use the Laplace transform of the function $K_{T,\nu}^{(N)}(t)$. From recurrence relationship (7) we obtain

$$K_{T,\nu}^{(N)}(p) = \frac{1}{2}[1 + \exp(-pT(1-\xi))]K_{\xi T,\nu}^{(N-1)}(p). \quad (9)$$

Repeating this procedure N time, we have

$$K_{T,\nu}^{(N)}(t) \stackrel{LT}{=} K_{T,\nu}^{(N)}(p) = \frac{1 - \exp(-pT\xi^N)}{pT\xi^N} Q_N[pT(1-\xi)], \quad (10)$$

where

$$Q_N(z) = 2^{-N} \prod_{n=0}^{N-1} (1 + \exp(-z\xi^n)), \quad (11)$$

with $z = pT(1-\xi)$.

So, the Laplace-image of $J_N(p)$ accepts the form

$$J(p) = K_{T,\nu}^{(N)}(p)f(p). \quad (12)$$

For the large values of $N(N \gg 1)$ and $\text{Re}(pT\xi^N) \gg 1$ we have in the limit $N \rightarrow \infty$

$$J(p) = Q[pT(1-\xi)]f(p) = K_{T,\nu}(p)f(p). \quad (13)$$

Here $Q[pT(1-\xi)]$ is the limiting value of the product (11). So, the limiting value of the integral kernel $K_{T,\nu}(p)$ is reduced to the investigation of the limiting value of the product (11).

2.2. Generalization for an arbitrary self-similar process

The last result (13) allows in generalizing of previous calculations for any self-similar process. One can notice that result (10) for $K_{T,\nu}^{(N)}(t)$ at $N \gg 1$ can be written in the form

$$K_{T,\nu}^{(N)}(t) = \Delta(t/T) * \Delta(t/\xi T) * \dots * \Delta(t/\xi^{N-1}T) * K(t/\xi^N T). \quad (14)$$

Here

$$\begin{aligned} \Delta(x) &= \frac{1}{2}[\delta(x) + \delta(x - (1-\xi))] \\ K(t/\xi^N T) &= \frac{1}{\xi^N T} \left[\kappa(t/\xi^N T) - \kappa((t/\xi^N T) - 1) \right] \end{aligned} \quad (15)$$

To the nature of irreversibility in linear systems

The analysis of formulae (14) and (15) prompts us to consider more general expressions for an arbitrary memory function $K^{(N)}(t)$ figuring in (14). Let us consider more general recurrence relationship

$$K^{(N)}(t) = \beta_{N-1} g(\alpha_{N-1} t) * K^{(N-1)}(t). \quad (16)$$

Here $g(t)$ is an arbitrary function, $\{\alpha_{i-1}\}$, $\{\beta_{i-1}\}$ ($i=1,2,\dots,N,\dots$) are sets of the constants. Applying the Laplace transform to the last expression we have

$$K^{(N)}(p) = \prod_{n=0}^{N-1} \frac{\beta_n}{\alpha_n} \hat{g}\left(\frac{p}{\alpha_n}\right). \quad (17)$$

We took into account the relationship

$$g(\alpha t) \stackrel{LT}{=} \frac{\hat{g}(\alpha p)}{\alpha}, \quad (18)$$

and initial condition

$$K^{(0)}(t) = \beta_0 g(\alpha_0 t). \quad (19)$$

Relatively to product (17) we are making *two suppositions*:

S1. We put

$$\alpha_n = \beta_n = \frac{1}{T \xi^n}, \quad (20)$$

and write product (17) in the form

$$K^{(N)}(z) = \prod_{n=-(N-1)}^{N-1} \hat{g}(z \xi^n) = \prod_{n=0}^{N-1} \hat{g}(z \xi^n) \prod_{n=1}^{N-1} \hat{g}(z \xi^{-n}). \quad (21)$$

Here we took into account the relationship (20) and extended the product also for *negative* values of n .

S2. We suppose that Laplace-image of $g(z)$ has the following decompositions

for $\text{Re}(z) \square 1$

$$\hat{g}(z) = 1 + c_1 z + c_2 z^2 + \dots, \quad (22)$$

for $\text{Re}(z) \square 1$

$$\hat{g}(z) = \bar{g} + \frac{A_1}{z} + \frac{A_2}{z^2} + \dots. \quad (23)$$

Mathematical calculations realized in [8] show that:

(A) There is a limit of $K^{(N)}(z)$

$$\lim_{N \rightarrow \infty} K^{(N)}(z) \equiv K_\nu(z) = \frac{\pi_\nu(\ln(z))}{z^\nu}, \quad (24a)$$

where

$$\nu = \frac{\ln(\bar{g})}{\ln(\xi)}, \quad (24b)$$

and $\pi_\nu[\ln(z)]$ is a periodical function with the period of $\ln \xi$

$$\pi_\nu(\ln(z) \pm \ln \xi) = \pi_\nu(\ln(z)). \quad (25)$$

(B) The averaged value of the function $\pi_\nu[\ln(pT)]$ over the period $\ln \xi$ is defined by expression

$$C(\nu) \equiv \langle \pi_\nu(\ln(z)) \rangle = \int_{-1/2}^{1/2} \pi_\nu(\ln(z) + x \ln \xi) dx, \quad (26)$$

where the value of the constant $C(\nu)$ can be evaluated and equals

$$C(\nu) = \frac{1 - \bar{g}}{\ln(1/\bar{g})} \exp \left[\frac{1}{\ln(\xi)} \int_0^\infty \ln(u) \frac{\hat{g}'(u)}{\hat{g}(u)} du \right]. \quad (27)$$

(C) In the limit $N \rightarrow \infty$ one can obtain

$$J(t) = \langle K_\nu(t) \rangle * f(t) = \frac{C(\nu)}{T^\nu} D^{-\nu} [f(t)] \equiv \frac{C(\nu)}{T^\nu \Gamma(\nu)} \int_0^t (t - \tau)^{\nu-1} f(\tau) d\tau \quad (28)$$

the desired relation with the fractional Riemann-Liouville integral

$$\langle K_\nu(t) \rangle \equiv \int_{-1/2}^{1/2} K_\nu(t \xi^{-x}) \left(\frac{\bar{g}}{\xi} \right)^x dx = \frac{C(\nu)}{T \Gamma(\nu)} \left(\frac{t}{T} \right)^{\nu-1}. \quad (29)$$

In the partial case

$$\hat{g}(z) = \frac{1 + \exp(-z)}{2}, \quad (30)$$

for the binary Cantor set considered in the previous section the calculations give

$$\bar{g} = \frac{1}{2}, \quad C(\nu) = \frac{\exp \left(- \left(1 + \frac{\nu}{2} \right) \ln 2 \right)}{\ln(2)}. \quad (31)$$

The basic result of this section (24) can be easily understood if we notice the fulfillment of the following relationship, which is *exact* for any *finite* N

$$K^{(N)}(\xi z) = \frac{g(z \xi^N)}{g(z \xi^{-N+1})} K^{(N)}(z). \quad (32)$$

Taking into account the conditions (23) in the limit $N \rightarrow \infty$ relationship (32) for the fixed N is reduced to the scaling functional equation of the type

$$K(\xi z) = \frac{1}{\xi} K(z), \quad (33)$$

having the solution (24) for any sequence $\{\xi, \xi_1, \xi_2, \dots, \xi_N, \dots\}$ distributed on any countable set. If the sequence $\{\xi\}$ is continuous then we immediately restore the previous result [7] expressed by formulae (28) and (29).

3. The fractional integral with complex exponent

3.1. Consideration of the Cantor set with M bars. One mode approximation

The principal result (24) obtained in the previous section for wide class of functions $\hat{g}(z)$ with a variable z , which can accept real or complex values, helps to understand the meaning of fractional integral with the complex exponent. Following to ideas developed in [16] the periodical function with unit period can be expanded into the infinite Fourier series

$$\pi_\nu \left(\frac{\ln(z)}{\ln(\xi)} \right) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_n \exp \left(2\pi n i \frac{\ln(z)}{\ln(\xi)} \right). \quad (34)$$

Taking into account the definition (24b) for ν and the last expression one can present expression (24) in the form

$$K_\nu(z) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_n \exp \left[\left(\ln \left(\frac{1}{\xi} \right) + 2n\pi i \right) \frac{\ln(z)}{\ln(\xi)} \right] = \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_n \exp [(-\nu + i\Omega_n) \ln(z)]. \quad (35)$$

Here the real exponent ν is defined by expression (24b), $\Omega_n = 2\pi n / \ln \xi$ is a set of frequencies providing a periodicity with $\ln \xi$ of product (24a). Let us suppose that this infinite series can be replaced approximately by three terms

$$\begin{aligned} K_\nu(z) &\cong z^{-\nu} \left(C_0 + A_n \exp(i \langle \Omega \rangle \ln z) + A_n^* \exp(-i \langle \Omega \rangle \ln z) \right) \\ &= z^{-\nu} \left(C_0 + |A_n| \cos(\langle \Omega \rangle \ln z - \psi) \right) = C_0 z^{-\nu} + A_n z^{-\nu + i \langle \Omega \rangle} + A_n^* z^{-\nu - i \langle \Omega \rangle}. \end{aligned} \quad (36)$$

Here $\langle \Omega \rangle$ is the averaged frequency referring to the leading term with an averaged value of n and the complex amplitude $A_n = |A_n| \exp(i\psi)$. These parameters determine the contribution of the leading term in the corresponding series (35). The value $\langle \Omega \rangle$ is defined as

$$\langle \Omega \rangle = \frac{2\pi \langle n \rangle}{\ln \xi}. \quad (37)$$

For verification of expression (36) one can use the eigen-coordinates (ECs) method and consider the values C_0 , $|A_n|$, $\langle \Omega \rangle$ and ψ as a set of the fitting parameters. As an initial product one can take Laplace expression for M Cantor bars obtained in [8]

$$g_M(z) = \frac{1}{M} \frac{1 - \exp\left(-\frac{zM}{M-1}\right)}{1 - \exp\left(-\frac{z}{M-1}\right)}. \quad (38)$$

In particular case $M=2$ this generalized expression coincides with (30). The basic principles of the ECs method have been considered in papers [21-25]. So, it is not necessary to repeat here the basic ideas. Here we are giving only the ECs for the function

$$y(z) = C_0 + |A_n| \cos(\langle \Omega \rangle \ln(z) - \psi), \quad K_\nu(z) \equiv z^{-\nu} y(z). \quad (39)$$

In accordance with the ideology of the ECs method expression (39) initially including some nonlinear fitting parameters $(\langle \Omega \rangle, \psi)$ can be transformed identically into the basic linear relationship

$$Y(x) = C_1 X_1(x) + C_2 X_2(x) + C_3 X_3(x). \quad (40)$$

Here

$$\begin{aligned} Y(x) &= y - \langle \dots \rangle \\ X_1(x) &= \int_{x_0}^x (x-u) y(u) du - \langle \dots \rangle, \quad C_1 = -\langle \Omega \rangle^2, \\ X_2(x) &= x^2 - \langle \dots \rangle, \quad C_2 = \frac{\langle \Omega \rangle^2 C_0}{2}, \\ X_3(x) &= x - \langle \dots \rangle, \quad C_3 = (\langle \Omega \rangle^2 C_0 x_0 + y'(x_0)) \end{aligned} \quad (41)$$

is a linear combination of some functions depending on the variable $x = \ln(z)$. Relationship (40) helps to find two important fitting parameters C_0 and $\langle \Omega \rangle$. Other two parameters $|A_n|$ and ψ are found from another basic linear relationship

$$U(x) = A_1 \cos(\langle \Omega \rangle x) + A_2 \sin(\langle \Omega \rangle x), \quad (42)$$

where

$$U(x) = y(x) - C_0, \quad A_1 = |A_n| \cos \psi, \quad A_2 = |A_n| \sin \psi. \quad (43)$$

So, with the help of last expressions one can verify numerically the supposition (36) and calculate the necessary values of the fitting parameters C_0 , $\langle \Omega \rangle$, $|A_n|$ and ψ .

To the nature of irreversibility in linear systems

Numerical calculations are realized by means of the following procedure:

1. Calculation of the function $y(x)$ in accordance with definition (39).
2. Calculation of the fitting constants C_k ($k=1,2,3$) in accordance with linear relationship (40) by the *linear least-square method* (LLSM). They should present a set of sloping lines if supposition (36) is correct. The sloping lines C_1 and C_2 for $M=2$ are shown in Fig.1
3. Calculation the necessary set of the fitting parameters ($C_0, \langle \Omega \rangle, |A_n|, \psi$). The final verification of expressions (37). This final stage is presented by Figs. 2 and 3 respectively.

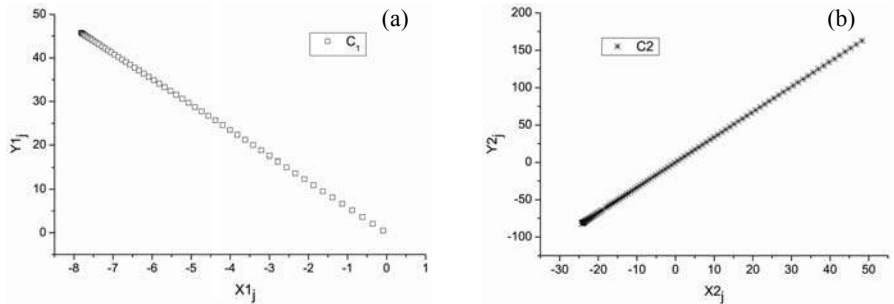


Fig.1. **(a)** Plot for the constant C_1 calculated for number of bars $M = 2$. The sloping line indicates that the corresponding hypothesis for $y(x)$ presented by (37) is correct. The tangent of the sloping line equals -5.85979 . **(b)** Plot for the constant C_2 calculated for $M = 2$. Again the sloping line indicates that the corresponding hypothesis for $y(x)$ presented by expression (37) is correct. The tangent of the sloping line equals 1.88859 .

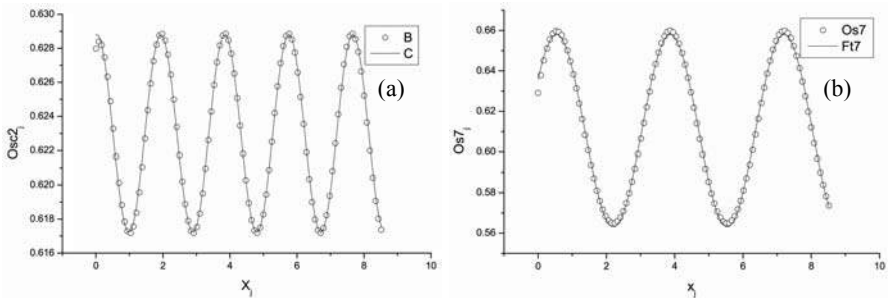


Fig.2. **(a)** Oscillating part of $y(x)$ shown by open points and its fit (shown by solid lines) calculated with the help of the ECs method for $M = 2$. The values of the fitting parameters are collected in Table I. **(b)** Oscillating part of $y(x)$ shown by open points and its fit (shown by solid lines) calculated by the ECs method for $M = 7$. The values of the fitting parameters are collected in Table I.

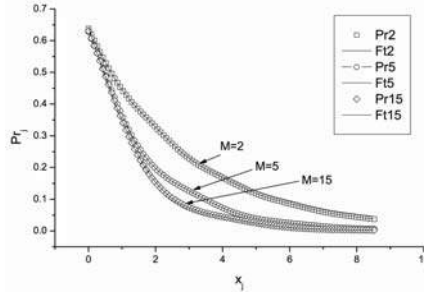


Fig.3. Calculated values of the product corresponding to the function defined by expression (36) for different values of bars, which are defined by parameter M . Their fitting curves corresponding to function (37) are shown by solid lines. The values of the fitting parameters are collected in Table I.

The values of the fitting parameters for various M and ξ are collected in Table I. These numerical calculations prove that supposition (36) is correct and physically reflects the true *discrete* structure of the fractal considered. It is interesting to note from analysis of the parameters given in Table I that the basic contribution to approximate expression (36) comes from the first Fourier components ($\langle n \rangle \cong 1$). Other parameters exhibit a monotonic behavior with respect to number of bars M . See, for example, Figs. 4a and 4b.

Table I. The basic initial (the first 3 rows) and the fitting parameters (rest rows) obtained in the result of numerical verification of expressions (37)

M	ξ	ν	C_0	A_0	A_1	Ω	ψ	$\langle n \rangle$	Stdev
2	0.125	0.3333	0.63	0.0082	-0.0015	3.01161	-0.1748	0.9967	9.5E-5
5	0.05	0.5372	0.6117	0.0217	0.028	2.09144	0.9068	0.9972	6.1E-4
7	0.0357	0.584	0.6106	0.0252	0.0404	1.8853	1.0137	1.0000	8.3E-4
10	0.025	0.624	0.609	0.0293	0.0533	1.7045	1.06874	1.0001	1.3E-3
13	0.0192	0.6492	0.6074	0.0382	0.0621	1.5911	1.08429	1.1011	1.7E-3
15	0.0167	0.6614	0.606	0.0353	0.0661	1.5331	1.08074	0.9991	2.1E-3

Based on Laplace image (39) it is easy to come back in time-domain generalizing the value of the fractional Riemann-Liouville integral for complex values of the fractional exponent. Using relationship [26]

$$\frac{t^{\alpha-1}}{\Gamma(\alpha)} \stackrel{LT}{=} p^{-\alpha}, \quad (44)$$

one can present expression (36) in the form

$$K_\nu(t) = C_0 \frac{t^{\nu-1}}{\Gamma(\nu)} + A_n \frac{t^{\nu+i\langle\Omega\rangle-1}}{\Gamma(\nu+i\Omega)} + A_n^* \frac{t^{\nu-i\langle\Omega\rangle-1}}{\Gamma(\nu-i\Omega)}. \quad (45)$$

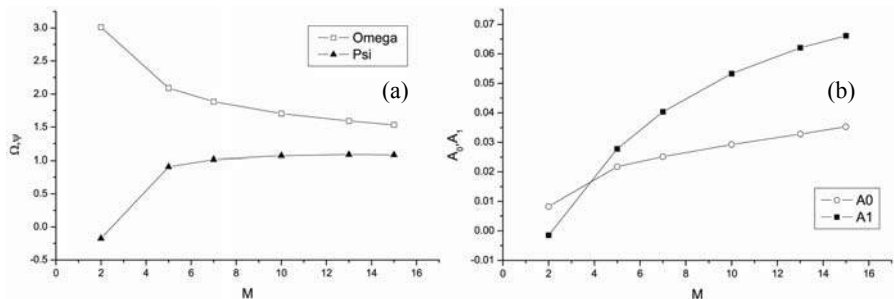


Fig.4. (a) Dependence of the basic fitting parameters against the number of bars (M) is monotonic. Here we show the functions $\Omega(M)$ and $\psi(M)$. (b) Dependence of the basic fitting parameters $A_0 = |A| \cos(\psi)$ and $A_1 = |A| \sin(\psi)$ against the number of bars (M) exhibits again a monotonic dependence. Other parameters are collected in Table I.

It is easy to note that the first term in the last expression represents itself the evaluation of the kernel $K_v(t)$ in the *continual* approximation, other two terms reflect the discrete scale invariance phenomenon existing for true discrete fractals. The averaging procedure (see expression (26)) developed in the book [2] leads to zero values for the two last terms and effect of a “fractal digitization” is disappearing. So, coming back to objections expressed in papers of R. Rutman [11,12] one can say that initially this effect was not noticed and a “naive” attempt to replace a discrete product (17) by its continuous analog can be considered as *approximate*. The correct replacement requires the additional averaging procedure (26) or consideration of the fractal periodical effect, which in the simplest form can be expressed by two additional terms figuring in expression (45).

So, one can prove that the difference between random fractal, which accept any value of a scale from the given interval $(0, T)$ and discrete fractal that accept only *countable* set of scales leads to phenomenon of discrete scale invariance [4,17-20]. This phenomenon is expressed in the form of log-periodical functions with period depending on the scaling parameter $\ln \xi$. The eigen-coordinates method helps to identify the function $y(z)$ (39) and find the necessary fitting parameters C_0 , $\langle \Omega \rangle$, $|A_n|$ and ψ .

Attentive analysis of exact relationship (32) helps to find self-similar structures leading in time-domain to the complex fractional integral. Let us consider the additive sums of the following type appearing in averaging of a physical value over a discrete fractal structure [8]

$$S_N(z) = \sum_{n=-N+1}^{N-1} b^n f(z \xi^n). \quad (46)$$

Here and below the variable z can accept any real or complex value. This sum for any finite N has the following scaling property

$$S_N(z\xi) = \frac{1}{b} S_N(z) + b^{N-1} f(z\xi^N) - b^{-N} f(z\xi^{-N+1}). \quad (47)$$

If the function $f(z)$ is chosen in a way that contribution of the last two terms in the limit $N \rightarrow \infty$ becomes negligible then we obtain again the scaling equation of the type (33) with solution

$$S(\xi z) = \frac{1}{b} S(z), \quad S(z) = \frac{\pi(\ln(z))}{z^\nu}, \quad (48)$$

where $\pi(\ln(z))$ again is a log-periodical function, satisfying to condition (25), $\nu = \ln(b)/\ln(\xi)$. Solutions of the scaling equations of more general type obtained by variation of arbitrary constants are considered in the Mathematical Appendix. For $\bar{g}, b = \pm 1$ in Eqns. (33), (48) $\nu = 0$ and one can expect 'pure' log-periodical oscillations. For verification of these suppositions we chose two functions.

For the product (32) the probe function has a form

$$g(z\xi^n) = 1 - 2 \cos(z\xi^n) \exp(-z\xi^n), \quad (49a)$$

which for $0 < \xi < 0.5$ provides the boundary conditions $g(z\xi^N) \cong -1$, $g(z\xi^{N+1}) \cong 1$.

For the sum (46) with $b = 1$ the function has the form

$$f(z\xi^n) = [1 - \cos(z\xi^n)] \exp(-z\xi^n), \quad (49b)$$

which for the same interval of the scaling parameter $0 < \xi < 0.5$ provides zero boundary conditions $f(z\xi^N) \cong 0$, $f(z\xi^{N+1}) \cong 0$. The set of Figs. 5 depict the desired oscillations obtained for 'pure' complex' case with $\nu = 0$. The parameters of the fitting function (39) for some values of ξ are given in Table II. Finishing this section one can say that possible complex solution of the scaling equation (33) always exist for one of the negative values $g(z\xi^N)$, $g(z\xi^{-N+1})$. For this case we have the solution

$$K(z) = \frac{\pi(\ln(z))}{z^\nu}, \quad \pi(\ln(z) \pm \ln(\xi)) = -\pi(\ln(z)) \quad (50)$$

with $\nu = \ln(1/\bar{g})/\ln(1/\xi)$. So, decomposition of the log-periodic function for this case into the Fourier series should contain only odd components

$$S_N(z) = \sum_n [\varphi(n)]^\beta F(z[\varphi(n)]^\alpha). \quad (51)$$

To the nature of irreversibility in linear systems

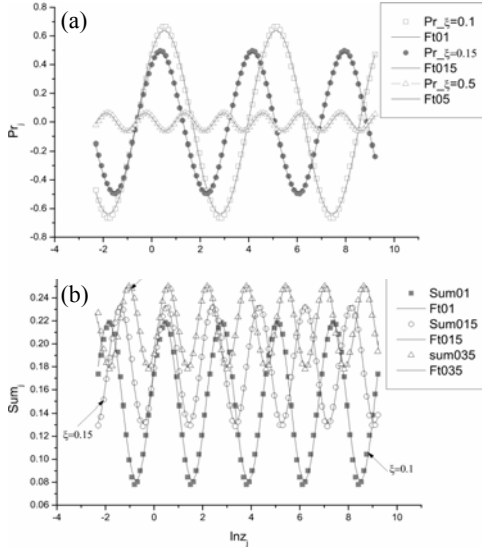


Fig.5. **(a)** Numerical verification of the function (49a). Here we reproduce the product (32) calculated for $\xi = 0.1, 0.15$ and 0.5 . The parameters of the fitting function defined by expression (36) are given in Table II. The range of variable z is located in the interval $[0.1 \div 10000]$. The function (25) at $v = 0$ satisfies to condition: $\pi_0 (\ln(z) \pm \ln \xi) = -\pi_0 (\ln(z)) \cdot$ **(b)** Numerical verification of the function (49b). Here we reproduce the calculated values of sum (46) for $\xi = 0.1, 0.15$ and 0.35 . The parameters of the function defined by (36) are given in Table II. The range of variable z is located in the same interval $[0.1 \div 10000]$

Table II. The calculated fitting parameters obtained for product (32) with function (49a) (the first nine rows marked bold) and sum (46) with function (49b) (the last eight rows).

ξ	C_0	A_0	A_1	Ω	ψ	$\langle n \rangle$	Stdev
0.1	-0.24E-4	0.486081	0.414370	1.361998	0.705923	0.499128	0.00964
0.15	3.927E-5	0.410544	0.258893	1.653635	0.5626226	0.499293	0.005364
0.2	-1.3E-5	0.33813	0.13424	1.94831	0.377924	0.499059	0.0038366
0.25	6.88E-5	0.27102	0.046309	2.26341	0.1692346	0.499389	0.003052
0.3	2.163E-6	-0.203831	0.017272	2.599207	0.08453686	0.49805546	0.003325
0.35	-7.62E-7	-0.1404406	0.0481402	2.97784	0.330228	0.4975498	0.0031357
0.4	1.948E-8	0.0820374	-0.057847	3.406445	0.6141585	0.4967693	0.0031405
0.45	-1.63E-7	0.03623903	-0.0530627	3.901106	0.971607	0.495778	0.0033237
0.5	2.288E-8	-0.006377	0.0374794	4.481137	1.402258	0.4943492	0.0029298
0.1	0.150513	0.0284258	0.0630613	2.7203411	1.14731	0.996917	0.0023746
0.15	0.1826834	-0.0031946	0.051340	3.29363	1.50865	0.994466	0.0015673
0.2	0.21534	-0.020898	0.0292423	3.871489	-0.9503057	0.991682	0.001787
0.25	0.25	-0.0227797	0.0068779	4.4808124	-0.2932225	0.9886267	0.0017665
0.3	0.287858	-0.0130835	-0.0070482	5.1412523	0.4941338	0.985158	0.0017137
0.35	0.33012601	-0.0011869	-0.0082609	5.867455	1.428099	0.9803601	0.0014721
0.4	0.378235	0.0033914	-0.002246	6.6804012	0.585039	0.9742176	0.001067
0.45	0.434027	0.0010721	0.0010717	7.6022915	0.785196	0.9661482	0.0006704

3.2 Some generalizations

Let us consider the sum or the product of the following type

$$S_N(z) = \sum_n [\varphi(n)]^\beta F(z[\varphi(n)]^\alpha), \quad (52a)$$

$$K^{(N)}(z) = \prod_n g(z\varphi(n)^\alpha). \quad (52b)$$

It is supposed that the values of the discrete variable n is located in the interval, which keeps the real values of the function $\varphi(n)$. These expressions can be transformed to the following forms

$$S_N(z) = \sum_n [\varphi(n)]^\beta F(z[\varphi(n)]^\alpha) = \sum_{K=-(N-1)}^{N-1} b^K F(z\xi^K), \quad (53a)$$

$$K^{(N)}(z) = \prod_n g(z\varphi(n)^\alpha) = \prod_{K=-(N-1)}^{N-1} g(z\xi^K). \quad (53b)$$

Here $b = \exp(\beta)$, $\xi = \exp(\alpha)$, $K = \ln[\varphi(n)]$. If the initial values of n are chosen in such a way that discrete values of K are located in the interval $[-N+1 \leq K \leq N-1]$ then the mapping $\varphi(n) = \exp(K)$ keeps *invariant* all properties proved initially for product (32) and finite sum (46). So, one can say that fractional integral with real or complex exponent exists not only for genuine fractal structures. The mapping $\varphi(n) = \exp(K)$ considerably increases the results obtained for new type of structures, which can be reduced to the fractal ones on mesoscale region. It has a sense to define these structures as *quasi-fractals* structures. In particular, in chapter 8 of the book [8] we consider the model of coordination spheres, when $n \equiv \varphi(n)$. As numerical verifications show the dependences $N_n = N_0 n^\alpha$ and $R_n = R_0 n^\beta$ approximate very well the number of particles N_n and their radiuses R_n as a function of a number of the current coordination sphere n ($n = 0, 1, 2, \dots$). The model of coordination spheres can be applied for calculation of number of particles for wide number of heterogeneous substances including clusters of different nature. No needless to say that similar quasi-fractal structures leading also to the fractional integral of the Riemann-Liouville type are needed in more detailed investigations as new potential objects figuring in mesoscale region.

4. Recap and reind elements with complex exponents

4.1. Possibility of existence of reind and recap elements with complex exponents

In our book [8] it has been proved that self-similar structures combined from R (resistance), C (capacitance) and L (inductance) elements form passive two-poles, which we defined as *recap* (resistance + capacitance) and *reind* (resistance + inductance) elements. Their impedances are expressed in the form

$$\begin{aligned} Z_\nu(j\omega) &= R(j\omega)^{-\nu} \quad (0 \leq \nu \leq 1) \\ Z_\nu(j\omega) &= R(j\omega)^\nu \quad (0 \leq \nu \leq 1) \end{aligned} \quad (54)$$

The first expression defines the complex impedance of recap; the second one belongs to reind element. All analytical evaluations, which lead to expressions

(54) were performed in the continual limit [8]. One can expect that calculations realized for true discrete structures will contain log-periodic functions, reflecting discrete scale invariance phenomenon. In fact, these log-periodic functions are contained definitely as solutions of the scaling equation

$$\Phi(z\xi) = b\Phi(z), \quad (55)$$

if parameters b and ξ form independent countable sets [8]. For other fractal structures, which are not satisfied to functional equation (55) the existence of log-periodic solutions needs in a special investigation. Consider, for example, the chain of two elements: resistance R and capacitance $Z = R/(j\omega\tau\xi^n)$ ($\tau = RC$, $\xi < 1$) connected *in series*. The total admittance of these elements ($-N + 1 < n < N - 1$) connected *in parallel* is expressed in the form [2]

$$Y_N(z) = \frac{1}{R}(1 - S_N(z)). \quad (56a)$$

If these two elements R and $Z = R/(j\omega\tau\xi^n)$ ($\tau = RC$, $z = j\omega\tau$) are connected *in parallel*, then the total impedance of these elements connected *in series* is expressed in the form

$$Z_N(z) = RS_N(z). \quad (56b)$$

For ‘extraction’ of log-periodic solutions we consider the sum

$$S_N(z) = \sum_{n=-(N-1)}^{N-1} \frac{1}{1 + z\xi^n}, \quad (57)$$

figuring in both expressions (56). According to expression (47) we have the following scaling equation (if $f(z\xi^N) \cong 1$, $f(z\xi^{N+1}) \cong 0$)

$$S(z\xi) = S(z) + 1. \quad (58)$$

Solution of this equation (see Mathematical Appendix) can be written in the form

$$S(z) = \pi(\ln(z)) + \frac{\ln(z)}{\ln \xi}. \quad (59)$$

Figs. 6a and 6b show the results of numerical verification of solution (59). In Fig. 6a we depict the situation, when possible oscillations are completely *hidden* and suppressed totally by the second term $\ln(z)/\ln(\xi)$. After subtraction of the second term in (59) possible oscillations evoked by discrete circuit structure become visible. Oscillations $S(z) - \ln(z)/\ln(\xi)$ shown on Fig. 6b are described well by the fitting function

$$\begin{aligned} \pi(\ln(z)) &= C_0 + C_1 \exp(i < \Omega > \ln(z)) + C_1^* \exp(-i < \Omega > \ln(z)) \\ < \Omega > = \frac{2\pi < n >}{\ln(1/\xi)}, \end{aligned} \quad (60)$$

with the following values of the fitting parameters $\xi=0.1$, $C_0=34.5$, $C_1=A_1\exp(i\psi)$ ($A_1=-3.19382\text{E-}5$, $\psi=1.53985$, $\langle n \rangle=0.996368$, $\langle \Omega \rangle=2.71884$). The standard deviation of the absolute difference between the left and the right parts of expression (60) equals $\text{Stdev}=1.45291\text{E-}5$.

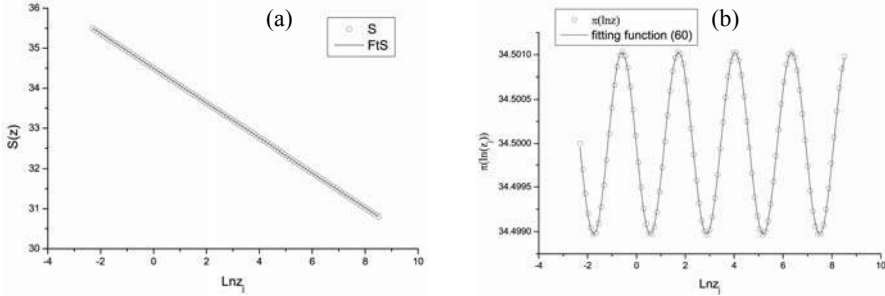


Fig.6. (a) The calculated sum defined by expression (59) (gray points) and the fitting function (solid line) defined by expression $y(z) = \ln(z)/\ln(\xi) + B$ ($\xi=0.1$, $B=34.5115$). In this presentation a possible discrete structure is completely hidden. In order to see possible oscillations it is necessary to analyze the difference expressed by (60). (b) The log-periodic function and its fitting (expression (60)) obtained by the ECs method. The fitting parameters calculated for $\xi=0.1$ are given in the text.

In more general cases for *discrete* self-similar structures one can write the following generalization of expressions (54)

$$\begin{aligned} Z_\nu(j\omega) &= R \left[(j\omega)^{-\nu} + C(j\omega)^{-\nu+j\Omega} + C^*(j\omega)^{-\nu-j\Omega} \right] \quad (0 \leq \nu \leq 1) \\ Z_\nu(j\omega) &= R \left[(j\omega)^\nu + C(j\omega)^{\nu+j\Omega} + C^*(j\omega)^{\nu-j\Omega} \right] \quad (0 \leq \nu \leq 1) \end{aligned} \quad (61)$$

Here R is a dimension value, C is a dimensionless complex constant of the order of unity, Ω is a leading frequency defined by expression (60). The structure of expressions (61), when terms containing complex exponents form a *complex-conjugated* pair follows from general expression (34).

The existence of the generalized expressions (61) is confirmed by numerical calculations but it would be interesting to discover this behavior in real experimental situations analyzing impedances/admittances frequency behavior of various heterogeneous structures.

4.2. 'Strange' fractal kinetics

A strong evidence has been presented earlier [9,27,28] that the generalized kinetic equations containing fractional derivatives and integrals describe well raw dielectric spectroscopy (DS) data, which, in turn, are related to measurements of complex

permittivity in frequency domain. For this aim the special recognition procedure has been developed. It includes a presentation of DS data in the so-called *ratio* format. The special *separation* procedure helps to identify the number of relaxation processes and determines at least qualitatively the possible structure of fractional equation describing the relaxation of the total polarization in time-domain. Experimental DS data are described very well by complex permittivity functions, which correspond to new identified kinetic equations with fractal derivatives in time-domain. As a *basic* result, which follows from this new approach one can obtain a new interpretation of the empirical Vogel-Fulcher-Tamman (VFT) equation together with its possible corrections [27]. This equation taken in the conventional and generalized forms describes the temperature dependence of low-frequency loss peak for wide class of heterogeneous materials. These papers can be considered as an essential argument that "fractal" kinetics really exists in nature. These identified and recognized kinetic equations have the following forms

$$\begin{aligned} & \left(\tau_1^{\nu_1} D_{t_0}^{\nu_1} + \tau_2^{\nu_2} D_{t_0}^{\nu_2} \right) (P(t) - P(t_0)) + P(t) = 0, \\ & \left(\tau_1^{-\nu_1} D_{t_0}^{-\nu_1} + \tau_2^{-\nu_2} D_{t_0}^{-\nu_2} \right)^{-1} (P(t) - P(t_0)) + P(t) = 0. \end{aligned} \quad (62)$$

Here $P(t)$ is a value of the total polarization, $\tau_{1,2}$ are characteristic relaxation times, $\nu_{1,2}$ are fractional exponents located presumably in the interval $[0,1]$. It is interesting to mark that the second equation in (47) contains a linear combination of fractional *integral* operations, but this combination taken in inverse degree gives again a *specific fractional derivative*. The stationary solutions of these equations lead to the following expressions for complex susceptibility.

$$\begin{aligned} \varepsilon(j\omega) &= \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon(0) - \varepsilon_\infty}{1 + (j\omega\tau_1)^{\nu_1} + (j\omega\tau_2)^{\nu_2}}, \\ \varepsilon(j\omega) &= \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon(0) - \varepsilon_\infty}{1 + \left[(j\omega\tau_1)^{-\nu_1} + (j\omega\tau_2)^{-\nu_2} \right]^{-1}}. \end{aligned} \quad (63)$$

These expressions help to give a new interpretation of the VFT equation. This statement is confirmed by independent verification of randomly taken (from various international dielectric laboratories) raw DS data measured for complex permittivity.

These identified kinetic equations can be easily generalized. More general form of kinetic equation which can be considered as a potential candidate for description of DS complex permittivity data in wide class of heterogeneous materials can be written in the form

$$\sum_{k=1}^n \left(\tau_k^{\nu_k} D_{t_0}^{\nu_k} \right) (P(t) - P(t_0)) + P(t) = 0. \quad (64)$$

In partial cases ($n = 1$, $\nu = 1$ and $n = 1$, $\nu \neq 1$) the last kinetic equation for the total polarization $P(t)$ coincides correspondingly with the known kinetics of the Debye's and Cole-Cole's type. The physical meaning of the last kinetic equation is the following. We suppose that all relaxation system including a set of strongly correlated microdipoles can be divided on n subsystems. It might be a set of dipole clusters or ensemble of strongly correlated molecules. Each subsystem is interacting with thermostat with the help of collision/rotation mechanism, which is expressed by means of fractional derivative. Each subsystem k ($k = 1, 2, \dots, n$) is characterized by own characteristic relaxation time τ_k showing the contribution of the chosen relaxation unit into the general process of relaxation. The number of subsystems, giving an additive contribution to the general picture of relaxation, is defined by a structure of the concrete heterogeneous material considered. At an initial stage the kinetic equation (64) can be considered as a reasonable and *phenomenological* hypothesis, which is recognized from correct treatment of DS data. After identification of this type of kinetic equation on a wide class of heterogeneous materials the further theoretical attempts should be undertaken in explanation of their *microscopic* origin. Probably, it will require the generalization of the Liouville equation for density matrix and introduction of new ideas related to irreversibility of time. At the present stage we suppose that this equation describing the relaxation of the total polarization in a bulk material can serve a basis of signal processing in the modern dielectric spectroscopy.

Now it becomes clear *how* to generalize the identified kinetic equation of the type (62) for the *complex* fractional exponents and clarify their physical meaning. Let us *suppose* that discrete scale structure in the heterogeneous material considered is conserved. The reasons of conservation of a discrete structure in some concrete material need a special consideration. If some materials exhibit the discrete scale invariant (DSI) property then it is necessary to replace a real fractional exponent by the triad of the following type

$$\tau_k^{\nu_k} D_{t_0}^{\nu_k} \Rightarrow \tau_k^{\nu_k} D_{t_0}^{\nu_k} + C \tau_k^{\nu_k + j\Omega_k} D_{t_0}^{\nu_k + j\Omega_k} + C^* \tau_k^{\nu_k - j\Omega_k} D_{t_0}^{\nu_k - j\Omega_k}. \quad (65)$$

The last two terms in (65) reflect the influence of a possible DSI property of a self-similar structure into the general process of relaxation. *Physically* this replacement can be interpreted as relaxation process taking place on a discrete log-periodical structure with a basic mode $\langle \Omega \rangle$ and having the states ν , which are kept on this structure. For random fractals the effect of log-periodicity is lost and only the real part of the total complex exponent is conserved. So, one can see the close relationship between geometrical (structural) and physical (relaxation) properties taking place on log-periodical self-similar structures. The most fascinating thing which follows from this generalization is the prediction of a 'strange' (unusual) kinetics, when the complex exponents accept a weak dependence on time. The contribution of one complex exponent coming from a genuine discrete structure into the general picture of relaxation can be presented in the form

$$\left(\tau^{\nu(t)} D_{t_0}^{\nu(t)} + C \tau^{\nu(t)+j\Omega(t)} D_{t_0}^{\nu(t)+j\Omega(t)} + C^* \tau^{\nu(t)-j\Omega(t)} D_{t_0}^{\nu(t)-j\Omega(t)} \right) (P(t) - P(t_0)) + \\ + P(t) = 0 \quad (66)$$

The kinetic equations of the type (64) and (66) with possible inclusion and evolution in time of complex fractional exponents (if their existence will be definitely proved in the nearest future) can require a deep reconsideration of the basics of the modern nonequilibrium statistical mechanics. We suppose that understanding of the physical meaning of complex fractional exponent opens new directions not only for dielectric spectroscopy, where the corresponding kinetic equations containing fractional integral/derivatives have been identified. It will give a stimulus for other branches of physics and chemistry of heterogeneous materials, where the discovery of fractional kinetics with any value of derivative (including the complex exponents) is still waiting its proper time.

5. Results and discussion

Based on the scale invariance property, which exists for fractals with clearly expressed discrete structure, it becomes possible to understand the geometrical/physical meaning of the fractional derivatives and integrals with complex fractional exponents. The true form of this complex structure, which can enter into kinetic equation with fractional derivative, has been found. These kinetic equations can solve the problem of the correct deduction of irreversibility phenomenon for *linear* systems. The fractional derivative with complex exponent should enter into a linear kinetic equation as a structure containing three basic terms. The first term reflects a possible continuous structure. Other two complex-conjugated terms reflect a log-periodicity of a scale, which forms the discrete fractal structure considered. This complex triad structure is confirmed by numerical calculations. We found also possible structures when real exponent $\nu = 0$. It can be happened at consideration of sum (46) at $b = 1$ and product (32) when one of the limiting value becomes *negative* or these values in asymptotic limit coincides with each other. We found also *quasi-fractal* objects, which keep invariant the Riemann-Liouville definition of the fractional integral with real and complex exponents. These objects considerably increase the applicability of the conception of the fractional integral obtained previously for true fractal structures. The understanding of geometrical meaning of complex fractional exponents helps to generalize the conception of recap and reind elements and put forward an idea of existence of kinetic equations with complex fractional derivatives. The conception of the fractional exponent helps to understand deeper the principal difference between discrete and continuous organization of a matter on mesoscale region and identify a set of genuine discrete self-similar structures, taking part in transfer and relaxation processes.

Mathematical Appendix

The solution of the generalized scaling equations

Here we want to generalize scaling equations of the type (32) and (47) and give their solutions obtained by the method of an arbitrary constant variation. Another method of finding of solutions of some set of scaling equations was considered in [29].

At first, one can notice that it is easier to obtain solutions of the generalized scaling equation (47). The corresponding solution of the generalized equation (32) is obtained by ordinary exponentiating. In the Table III given below we use the following notations: $\pi(\ln(z))$ is a log-periodic function, which in the most cases can be expressed in the form

$$\pi(\ln(z)) = C_0 + C_1 \exp(i < \Omega > \ln(z)) + C_1^* \exp(-i < \Omega > \ln(z)),$$

$$< \Omega > = \frac{2\pi < n >}{\ln(\xi)} \quad (A1)$$

The fitting parameters of this function can be found with the help of the eigen-coordinates method.

Table III.

Scaling Equation	Solution	Comments
1. $(b \neq 1)$ $S(z\xi) = bS(z) + c_0 +$ $\quad + \sum_{k=1}^n c_k z^k + c_{-k} z^{-k}$ $K(z\xi) = A[K(z)]^b \cdot$ $\quad \cdot \exp \left[\sum_{k=1}^n (c_k z^k + c_{-k} z^{-k}) \right]$	$S(z) = z^\nu \pi(\ln(z)) +$ $\quad + \frac{c_0}{1-b} +$ $\quad + \sum_{k=1}^n \left(\frac{c_k z^k}{\xi^k - b} + \frac{c_{-k} z^{-k}}{\xi^{-k} - b} \right)$ $K(z) = \exp(S(z))$	The limits of applicability: $c_{n+1} z^{n+1} \ll 1$ $c_{-n-1} z^{-n-1} \ll 1$ $K(z)$ can be considered as scaling equation for the stretched exponential function.
$(b = 1)$ $S(z\xi) = S(z) + c_0 +$ $\quad + \sum_{k=1}^n c_k z^k + c_{-k} z^{-k}$ $K(z\xi) = [K(z)] \cdot$ $\quad \cdot \exp \left[c_0 + \sum_{k=1}^n (c_k z^k + c_{-k} z^{-k}) \right]$	$S(z) = \pi(\ln(z)) +$ $\quad + \frac{c_0}{\ln(\xi)} \ln(z) +$ $\quad + \sum_{k=1}^n \left(\frac{c_k z^k}{\xi^k - 1} + \frac{c_{-k} z^{-k}}{\xi^{-k} - 1} \right)$ $K(z) = \exp(S(z))$	

Scaling Equation	Solution	Comments
2. $(b \neq 1)$ $S(z\xi) = bS(z) + a \ln(z) + c_0$ $K(z\xi) = e^{c_0} z^a [K(z)]^b$	$S(z) = z^\nu \pi(\ln(z)) +$ $+ \frac{a}{1-b} \ln(z) +$ $+ \frac{c_0}{1-b} - \frac{a \ln(\xi)}{(1-b)^2}$	One can add the term $\sum_{k=1}^n (c_k z^k + c_{-k} z^{-k})$ and obtain the corresponding solution.
$(b = 1)$ $S(z\xi) = S(z) + a \ln(z) + c_0$ $K(z\xi) = e^{c_0} z^a [K(z)]$	$S(z) = \pi(\ln(z)) +$ $+ \frac{a}{2 \ln(\xi)} (\ln(z))^2 +$ $+ \left(\frac{c_0}{\ln \xi} - \frac{a}{2} \right) \ln z$ $K(z) = \exp(S(z))$	

The variable z accepts any value and can be real or complex, $\nu = \ln(b)/\ln(\xi)$.

References

1. J. Keizer, *Statistical Thermodynamics of Nonequilibrium Processes*, ed. Springer-Verlag, New-York, 1987.
2. R.J. Zwanzig, Chem. Phys. **33** (1960) 1338; H. Mori, Progr. Theor. Phys. **33** (1965) 423.
3. D.N. Zubarev, *Non-Equilibrium Statistical Mechanics*, Nauka, Moscow, 1971; D.N. Zubarev and V.G. Morozov, Physica A, **120** (1983) 411.
4. H.G. Schuster, *Deterministic Chaos*, ed. Physik-Verlag, Weinheim, 1984.
5. K. Oldham and J. Spanier, the *Fractional Calculus*, ed. Academic Press, New-York and London, 1974.
6. R.R. Nigmatullin, Phys. Stat. Sol(b), **124** (1984) 389.
7. R.R. Nigmatullin. Theor. Math Phys. **90**(3) (1992) 354.
8. A. Mehaute, R.R. Nigmatullin et L. Nivanen. *Fleches du Temps et Geometrie Fractale*, Paris, ed. 'Hermes', 1998 (in French).
9. R.R. Nigmatullin, S.I. Osokin. J. Signal Processing. **83** (2003) 2433.
10. D. Sornette. Phys. Rep. **297** (1998) 239.
11. R.S. Rutman. Theor. Math. Phys. **100**(3) (1994) 476, (in Russian).
12. R.S. Rutman. Theor. Math. Phys. **105**(3) (1995) 393, (in Russian).
13. Fu-Yao Ren, Zu-Guo Yu, Feng Su. Physics Letters A **219** (1996) 59.
14. Zu-Guo Yu, Fu-Yao Ren and Ji Zhou. J.Phys.A: Math. Gen. **30** (1997) 5569.

15. Fu-Yao Ren and Jin-Rong Liang. *Physica A*. **286** (2000) 45.
16. *Applications of Fractional Calculus in Physics*. Ed. R. Hilfer, 'World Scientific' Publ. House, 2000, chapter 2.
17. A. Johansen, D. Sornette and A.E. Hansen. *Physica D* **138** (2000) 302.
18. A. Johansen and D. Sornette. *Int. J. Mod.Phys.* **9** (1998) 433.
19. D. Stauffer and D. Sornette. *Physica A* **252** (1998) 271.
20. Y. Huang, G. Quillon, H. Saleur, and D. Sornette. *Phys.Rev E*. **55**(6) (1997) 6433.
21. R.R. Nigmatullin. *Appl. Mag. Res.* **14** (1998) 601.
22. R.R. Nigmatullin. *Physica A*, **285** (2000) 547.
23. M.M. Abdul-Gader Jafar and R.R. Nigmatullin. *Thin Solid Films*, **396** (2001) 280.
24. R.R. Nigmatullin, M.M. Abdul-Gader Jafar, Naoki Shinyashiki, Seiichi Sudo and Shin Yagihara. *J. Non-Crystalline Solids*, **305** (2002) 96.
25. R.R. Nigmatullin, G. Smith. *Physica A* **320** (2003) 291.
26. M. Abramowitz and I. Stegun. *Handbook of Mathematical Functions*. Nat. Bureau of Standars 1964. chapter 6.
27. R.R. Nigmatullin, S.I. Osokin, and J.Smith. *J. Phys. C: (Condens. Matter.)* **15** (2003) 3481.
28. R.R. Nigmatullin, S.I. Osokin, and G. Smith. *J. Phys. D (Applied Physics)* **36** (2003) 2281.
29. R.M. Hill, L.A. Dissado and R.R. Nigmatullin. *J. Phys. C: (Condens. Matter.)* **3** (1991) 9773.

ЧЕТЫРЕХСЛОЙНЫЕ НАНОСТРУКТУРЫ ФЕРРОМАГНЕТИК-СВЕРХПРОВОДНИК: КРИТИЧЕСКИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ И УПРАВЛЯЮЩИЕ УСТРОЙСТВА

Ю.Н. Прошин

Казанский государственный университет, Казань

На основе развитой ранее теории эффекта близости для искусственных наноструктур ферромагнитный металл/сверхпроводник (FM/S) последовательно рассмотрены четырехслойные системы FM/S/FM'/S', состоящие из сравнительно грязных металлов. Проведено исследование зависимостей критических температур от толщины слоев в широком диапазоне параметров. Доказано, что данная система может иметь различные критические температуры для слоев S и S'. Показано, что четырехслойные системы являются наиболее перспективным кандидатом для использования в сверхпроводящей спиновой электронике и могут служить элементной базой для создания микроэлектронной аппаратуры принципиально нового типа, совмещающей преимущества сверхпроводящего и магнитного каналов записи информации в одном образце.

Введение

Сверхпроводимость и ферромагнетизм являются антагонистическими явлениями, и их сосуществование в однородных материалах требует специальных достаточно трудно выполнимых условий. Этот антагонизм проявляется, прежде всего, в их отношении к магнитному полю. Сверхпроводник стремится вытолкнуть магнитное поле (эффект Мейснера), тогда как ферромагнетик концентрирует силовые линии поля в своем объеме (эффект магнитной индукции). Первое объяснение подавления сверхпроводимости ферромагнитным упорядочением в переходных металлах было дано Гинзбургом [1], указавшим, что в этих металлах магнитная индукция превышает критическое поле.

С точки зрения микроскопической теории этот антагонизм также понятен: притяжение между электронами создает куперовские пары в синглетном состоянии, а обменное взаимодействие, приводящее к ферромагнетизму, стремится выстроить электронные спины параллельно. Поэтому, когда зеемановская энергия электронов пары в обменном поле I превысит энергию связи, мерой которой является сверхпроводящая щель Δ , сверхпроводящее состояние будет разрушено. В отличие от критического поля H_c , действующего на орбитальные состояния электронов пары, обменное поле действует на электронные спины (спиновые степени свободы), поэтому обусловленное им разрушение сверхпроводимости называют парамагнитным эффектом.

В силу указанных причин сосуществование сверхпроводящего и ферромагнитного параметров порядка (ПП) в однородной системе маловероятно,

однако в искусственно приготовленных слоистых системах FM/S, состоящих из чередующихся слоев ферромагнитного металла (FM) и сверхпроводника (S), оно легко достижимо. Благодаря эффекту близости, возможно наведение в слое FM сверхпроводящего ПП, а, с другой стороны, соседняя пара слоев FM будет взаимодействовать друг с другом через слой S. В таких системах возникает богатая физика, которой можно управлять, меняя толщину FM и S слоев или же помещая структуру FM/S во внешнее магнитное поле.

Современные технологии изготовления слоистых структур, такие как молекулярно-лучевая эпитаксия, позволяют наносить слои атомной толщины и изучать свойства таких гетерогенных систем FM/S в зависимости от толщины ферромагнитного (d_f) или сверхпроводящего (d_s) слоя. Многочисленные эксперименты по структурам FM/S (контактам и сверхрешеткам) выявили нетривиальные зависимости температуры сверхпроводящего перехода T_c от толщины ферромагнитного слоя (см. ссылки в обзоре [2]). Особый интерес представляет изучение многослойных структур F/S, где могут устанавливаться различные типы взаимного магнитного порядка в слоях F за счет косвенного взаимодействия их через слои S. В самое последнее время были предложены логические элементы нового типа (спиновые переключатели) на основе взаимосвязи сверхпроводящего и магнитного ПП в трехслойных [3,4] FM/S/FM-и многослойных [2,5-8] FM/S- структурах. Таким образом, общетеоретический интерес к проблеме взаимного влияния сверхпроводимости и магнетизма в структурах FM/S, а также богатый экспериментальный материал и возможные технические применения делают обсуждаемую проблему весьма актуальной.

В пионерских работах [9,10] для сверхрешетки FM/S была сформулирована краевая задача для парной амплитуды (волновой функции куперовской пары) в грязном сверхпроводнике и была вычислена температура сверхпроводящего перехода как функция d_f , которая давала как монотонный спад T_c , так и осциллирующую зависимость. Осцилляции $T_c(d_f)$ связывались с конкуренцией между 0-фазным и π -фазным типами сверхпроводимости в соседних слоях S. Однако, использованные в [9,10] граничные условия справедливы только в пределе высокой прозрачности поверхности раздела ферромагнетик-сверхпроводник. В последующих работах [11-14] граничные условия для краевой задачи были выведены из микроскопической теории, и они оказываются справедливыми при любой степени прозрачности границы. На основе решения более общих уравнений краевой задачи с учетом комплексного характера коэффициента диффузии были предсказаны и другие типы поведения $T_c(d_f)$: возвратная и периодически-возвратная сверхпроводимость [2,11-14]. Причем и осцилляции, и возвратное поведение $T_c(d_f)$ проявлялись как в простых двухслойных FM/S, так и в трехслойных FM/S/FM системах, в которых в принципе нет π -фазной сверхпроводимости [2,11-13]! Заметим, что предсказанный нашей теорией возвратный характер сверхпроводимости был недавно экспериментально обнаружен в трехслойной системе Fe/V/Fe [15].

Сейчас можно считать доказанным [2], что сверхпроводимость в системах FM/S является комбинацией спаривания по механизму БКШ с нулевым суммарным импульсом в слоях S и спаривания по механизму Ларкина-Овчинникова-Фульде-Феррелла (ЛОФФ) [16,17] с отличным от нуля трехмерным (3D) импульсом пар $\mathbf{k}$ в FM-слоях. Именно такое состояние приводит к осциллирующей зависимости $T_c(d_f)$ при высокой прозрачности контакта, тогда как при низкой или умеренной прозрачности зависимость $T_c(d_f)$ может принять сглаженный монотонный характер (см., например, работу Хусаинова в этом сборнике).

Необходимо особо отметить, что теория эффекта близости [9-14] для *сверхрешеток* FM/S, учитывающая обратное влияние сверхпроводимости на магнетизм слоев FM, появилась лишь недавно [2,5-8]. В то же время для аналогичных структур ферромагнитный диэлектрик/сверхпроводник (FI/S) [18,19] было показано, что дальнodelствующий обмен РККИ между соседними слоями FI через прослойки S приводит к слоистому антиферромагнитному сверхпроводящему (АФС) состоянию. В АФС состоянии фазы магнитного ПП в соседних слоях FI сдвинуты на π , что существенно ослабляет распаривающее действие парамагнитного эффекта обменного поля для слоев S и повышает T_c . Такого рода взаимная подстройка сверхпроводящего и магнитного параметров упорядочения, приводящая к квантовой связи между границами раздела и реализации π -фазного магнетизма, имеет место и в сверхрешетках FM/S [2,5-8]. В недавней работе на сверхрешетках Gd/La [20] было экспериментально подтверждено, что состояния с антиферромагнитным упорядочением соседних слоев FM переходят в сверхпроводящее состояние при значительно более высоких температурах по сравнению со сверхрешетками с ферромагнитным порядком слоев FM.

Отметим здесь особо, что упомянутые теоретические работы [3-8,18,19] во многом были обусловлены фундаментальным результатом, полученным в 1979 году Кочелаевым с сотрудниками [21]. Они показали, что радиус действия усредненного по примесям потенциала РККИ, равный в нормальном металле длине свободного пробега l_s , с переходом в сверхпроводящее состояние резко увеличивается до масштабов длины когерентности ξ_s . Таким образом, косвенный обмен РККИ в "грязном" сверхпроводнике приобретает дальнodelствующий вклад антиферромагнитного знака.

Спиновые переключатели тока на основе гетероструктур FM/S

Принцип работы спиновых устройств переключения тока (spin switch) на основе трехслойных систем FM/S/FM был предложен в работах [3,4] для сравнительно простого случая "куперовского предела", когда толщины слоев d_s и d_f значительно меньше соответствующих длин когерентности ξ_s и ξ_f . Теоретически было показано, что "антиферромагнитная" (АФ) конфигурация

такой трехслойной системы с противоположно направленными намагниченностями FM слоев энергетически более выгодна по сравнению с "ферромагнитной" (Ф) конфигурацией. Другими словами АФ конфигурация имеет более высокую температуру перехода в сверхпроводящее состояние T_c . Физически это связано с уменьшением распаривающего действия обменного поля слоя FM на сверхпроводящие пары в АФ конфигурации, с частичной компенсацией парамагнитного эффекта. Если зафиксировать направление намагниченности в одном из слоев FM за счет магнитной связи с еще одним внешним слоем диэлектрического антиферромагнетика, то взаимную ориентацию намагниченностей слоев FM можно менять, например, достаточно слабым внешним магнитным полем H , большим значения соответствующего коэрцитивного поля $H_{\text{соер}}$. Таким образом, при подходящем выборе параметров системы и при включении магнитного поля $H > H_{\text{соер}}$, которое меняет взаимное направления намагниченностей с АФ на Ф, возможен переход из сверхпроводящего состояния в нормальное: из состояния с нулевым сопротивлением в резистивное. При выключении магнитного поля восстанавливаются АФ ориентация намагниченностей (π -фазный магнетизм) и сверхпроводящие свойства системы. Этот эффект и был предложен для использования в переключателях тока.

Заметим, что данная схема работы "нет магнитного поля – есть сверхпроводящий ток, есть магнитное поле – нет сверхпроводящего тока", известна очень давно и может быть реализована в значительно более простом "устройстве", состоящем из одной сверхпроводящей пластины без слоев FM. Действительно, магнитное поле H , большее, чем критическое поле H_c , переводит изолированную пластину S в нормальное (N) несверхпроводящее состояние, и, наоборот, выключение поля возвращает системе сверхпроводящие свойства. Величина критического поля H_c определяется разностью критической и рабочей температур $T_c - T$ и может быть сделана сколь угодно малой. Конечно, общим ограничением для использования подобных управляющих устройств являются достаточно низкие температуры, при которых возможна обычная сверхпроводимость. Хотя, возможно, подобные схемы сверхпроводящей электроники могут работать и для высокотемпературных сверхпроводящих материалов.

Рассматривая переключатели сверхпроводящего тока нельзя не отметить еще несколько более ранних работ, посвященных подобным устройствам с одним каналом записи и работающих на переходе из сверхпроводящего в нормальное состояние. В работе [22] была предложена экспериментальная модель прибора на основе системы FM/I/S, в котором сверхпроводимость подавлялась за счет краевых магнитных полей, возникающих из-за специальной геометрии переключателя. Трехслойное устройство F'/F''/S, в котором слабое магнитное поле меняло направление

намагниченности во внутреннем достаточно тонком слое F'' , теоретически исследовалось в работе [24]. При изменении взаимного упорядочения намагниченностей M' и M'' с антипараллельного на параллельное устройство переходило из S в N состояние.

Отметим также, что была сделана экспериментальная попытка наблюдения эффекта "спинового переключения тока" на *трехслойной* системе CuNi/Nb/CuNi [24]. Удалось в принципе показать, что АФС состояния имеют более высокую температуру критического перехода. К сожалению, из-за неоптимального выбора параметров системы разница между $T_c(\text{АФС})$ и $T_c(\text{ФС})$ не превышала 0.005 К.

Значительно более богатой физикой обладают *многослойные* системы FM/S, в которых, кроме отмеченной конкуренции между магнитными состояниями, возникает конкуренция между 0- и π -фазными типами сверхпроводимости. Действительно, подробный анализ, проведенный нами в работах [2,5-8] на основе ранее развитой теории эффекта близости [11-14] для контакта грязных S и F металлов, показал, что сверхрешетки FM/S с большим количеством слоев обладают значительно большим числом состояний, а, следовательно, и логических вариантов работы возможных устройств хранения и обработки информации. При этом удалось найти варианты *раздельного* управления магнитным и сверхпроводящим каналом записи информации в отличие от трехслойных систем. Было показано, что для любых мультислоев с грязными S и F металлами ($I_{s,f} \propto \xi_{s,f} \propto d_{s,f}$), существует пороговая толщина d_s^π , ниже которой реализуются π -фазные по магнетизму состояния и которая меняется в пределах от $0.6\xi_{s0}$ до $0.85\xi_{s0}$ (здесь ξ_{s0} – длина когерентности БКШ). Критическая толщина сверхпроводящих слоев d_s^c , при которой T_c обращается в нуль, для АФС состояний всегда меньше, чем для ФС состояний. Таким образом, для сверхрешеток с $d_s^c < d_s < d_s^\pi$ сверхпроводимость будет иметь чисто АФС природу, причем этот диапазон толщин при специально подобранных параметрах может превышать $0.3\xi_{s0}$ [5-8], а для определенных толщин d_s из этого интервала разница $T_c(\text{АФС}) - T_c(\text{ФС})$ может стать очень существенной. Последние обстоятельства важны для устойчивой работы предлагаемых спиновых управляющих устройств. При обратном соотношении $d_s > d_s^\pi$ связь между намагниченностями соседних слоев FM через S прослойку становится пренебрежимо малой и выигрывают более симметричные ФС состояния.

Итак, как мы видим, сверхрешетки FM/S обладают рядом теоретических преимуществ по сравнению с трехслойными структурами для создания принципиальных рабочих схем предлагаемых управляющих устройств, предназначенных для хранения и обработки информации. Однако с практической точки зрения в мультислойной системе при большом

количестве слоев достаточно трудно организовать управление внешним магнитным полем направлениями намагниченностей в отдельных слоях ФМ*. Более перспективными с прикладной точки зрения являются сверхрешетки с конечным числом слоев, как с точки зрения изготовления, так и "последовательного" управления магнитным полем. Наиболее простыми FM/S системами, допускающими конкуренцию 0- и π -фазных состояний по магнетизму и по сверхпроводимости, являются 4-х и 5-слойные системы с двумя S-слоями. Качественно, без учета соответствующих граничных условий, они были рассмотрены в наших работах [2,7,8], где было показано, что число различных состояний, отличающихся как магнитным порядком, так и наличием (отсутствием) сверхпроводимости, и возникающих при изменении магнитного поля может достигать пяти.

Учет граничных условий в четырехслойной системе FM/S/FM'/S' должен привести к неэквивалентности слоев S и S', а, следовательно, и к разным критическим температурам для этих слоев. Ниже мы покажем, как это может отразиться на логических схемах работы предлагаемых управляющих устройств для записи, хранения и обработки информации. Мы получим фазовые диаграммы состояний четырехслойных систем FM/S/FM'/S' с последовательным учетом граничных условий, сравним их с диаграммами сверхрешеток, и, наконец, рассмотрим принципиальные схемы работы возможных устройств, созданных на их основе.

Четырехслойная FM/S/FM'/S' структура

Рассмотрим четырехслойную систему FM/S/FM'/S' с чередованием слоев вдоль оси z (см. рис.1). Указанные на рисунке толщины слоев взяты из соображений симметрии [2]. Выбор такой системы позволяет учитывать возможную смену фаз сверхпроводящего и магнитного ПП при переходе через FM или S слои соответственно и исследовать взаимную подстройку конкурирующих типов спаривания БКШ и ЛОФФ, с одной стороны, и магнетизма, с другой стороны. Для простоты будем рассматривать 1D-случай, когда ПП и парная амплитуда зависят только от z . Обобщение на 3D-случай проводится достаточно просто (см., например, [2,25]). Заметим только, что при рассматриваемом ниже выборе параметров, различие между 1D- и 3D-вариантами теории не очень существенно [5,6].

По рецептам работы [13], можно получить краевую задачу для функции Горькова-Узаделя $F(z, \omega)$. Запишем дифференциальные уравнения в слоях S и в слоях FM соответственно

* "Управление" сразу всеми намагниченностями приводит к необходимости использования дополнительных последовательностей выключающих полей, возвращающих систему в исходное состояние.

$$\left[\omega - \frac{D_s}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] F_s(z, \omega) = \Delta_s(z),$$

$$\left[\omega + iI + \frac{D_f}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] F_f(z, \omega) = \Delta_f(z). \quad (1)$$

Здесь $\omega = \pi T(2n+1)$ – мацубаровская частота; $D_{s(f)} = v_{s(f)} l_{s(f)}/3$ и $\Delta_{s(f)}$ – коэффициенты диффузии* электронов и сверхпроводящие ПП в слоях S(FM) соответственно. $v_{s(f)}$ и $l_{s(f)}$ – фермиевские скорости и длины свободных пробегов квазичастиц в слоях S(FM).

Соответствующие уравнениям (1) граничные условия на i -ой поверхности раздела ($z_1 = 0$, $z_2 = d_s$, $z_3 = d_s + d_f$) связывают поток парной амплитуды с ее скачком на внутренних границах раздела и имеют вид

$$\frac{4}{\sigma_s v_s} D_s \frac{\partial F_s(z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z=z_i} = \frac{4}{\sigma_f v_f} D_f \frac{\partial F_f(z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z=z_i} =$$

$$= \pm [F_s(z_i \pm 0, \omega) - F_f(z_i \mp 0, \omega)] \quad (2a)$$

Верхние знаки берутся на границе FM/S, нижние – на границе S/FM. Поток через внешние границы ($z_0 = -d_f/2$, $z_4 = 3d_s/2 + d_f$) отсутствует

$$\frac{4}{\sigma_f v_f} D_f \frac{\partial F_f(z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z=z_0} = \frac{4}{\sigma_s v_s} D_s \frac{\partial F_s(z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z=z_4} = 0. \quad (2b)$$

В (2) $\sigma_{s(f)}$ – коэффициенты прозрачности границы соответственно со стороны металлов S и FM (см. [2,13]) и могут меняться от нуля до бесконечности, удовлетворяя соотношению детального баланса $\sigma_s v_s N_s = \sigma_f v_f N_f$, где $N_{s(f)}$ – плотности состояний. Для вычисления критических температур этой системы FM/S в зависимости от прозрачности границы раздела, толщин слоев, и т.д. решим систему уравнений (1) и (2) совместно с уравнениями самосогласования Горькова [2,13]

$$\Delta(z)_s = 2\lambda_{s(f)} \pi T \operatorname{Re} \sum_{\omega > 0} F_s(z, \omega), \quad \Delta(z)_f = 2\lambda_{s(f)} \pi T \operatorname{Re} \sum_{\omega > 0} F_f(z, \omega) \quad (3)$$

где $\lambda_{s(f)}$ – константы межэлектронных взаимодействий в слоях S и FM.

Мощное распаривающее действие обменного поля I ($I \ll \pi T_{cs}$, где T_{cs} – критическая температура изолированного слоя S) является основным механизмом разрушения сверхпроводимости в системах FM/S. Для простоты

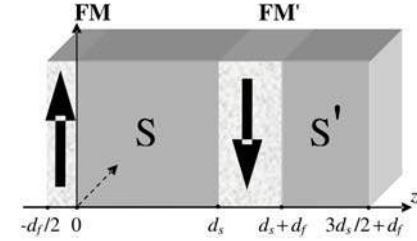


Рис.1. Светлым показаны слои FM, темным – слои S. Вертикальные стрелки показывают направления намагниченностей, играющие роль магнитного ПП

* Мы используем обычный коэффициент диффузии в слое FM, а не комплексный, как в [2,5-8,11-14], в соответствии с дискуссией [25], тем более что используемое ниже значение параметра $2I\tau_f \ll 1$ делает эту разницу незначительной.

положим, что в слоях FM $\lambda_f = 0$ ($\Delta_f = 0$), и будем искать решения уравнений (1)-(3) в виде линейной комбинации симметричных и антисимметричных относительно центров S- и FM-слоев функций. Отсутствие потока пар через внешние границы приводит к неэквивалентности решений для внутренних и внешних слоев рассматриваемой системы FM/S/FM'/S'. Будем искать решения краевой задачи (1)-(3) в виде

$$F_f = B \frac{\cos k_f(z + d_f/2)}{\cos(k_f d_f/2)}, \quad -d_f/2 < z < 0 \quad (4a)$$

$$F_s = A \frac{\cos k_s(z - d_s/2)}{\cos(k_s d_s/2)} + C \frac{\sin k_s(z - d_s/2)}{\sin(k_s d_s/2)}, \quad 0 < z < d_s \quad (4b)$$

$$F_{f'} = B' \frac{\cos k_{f'}(z - d_s - d_f/2)}{\cos(k_{f'} d_f/2)} + D' \frac{\sin k_{f'}(z - d_s - d_f/2)}{\sin(k_{f'} d_f/2)}, \quad d_s < z < (d_f + d_s) \quad (4c)$$

$$F_{s'} = A' \frac{\cos k_{s'}(z - d_f - 3d_s/2)}{\cos(k_{s'} d_s/2)}, \quad (d_f + d_s) < z < (d_f + 3d_s/2). \quad (4d)$$

Здесь $k_{s(f)}$ – не зависящие от частоты компоненты волнового вектора, описывающие пространственные изменения парной амплитуды F поперек слоев (вдоль оси z).

В результате для приведенной температуры сверхпроводящего перехода контакта FM/S $t = T_c/T_{cs}$ получается обычное уравнение типа уравнения Абрикосова-Горькова [2,13]

$$\ln t = \Psi\left(\frac{1}{2}\right) - \operatorname{Re} \Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{D_s k_s^2}{4\pi T_{cs} t}\right), \quad (5)$$

где $\Psi(x)$ – дигамма-функция, а параметр распаривания $D_s k_s^2$ является решением другого трансцендентного уравнения (своего для каждой из возможных фаз).

Подставляя (4) в (2) получим систему 6 уравнений на коэффициенты A, B, C, A', B', D'

$$\begin{cases} B + \alpha A + \beta C = 0; \\ \gamma B - A + C = 0; \\ \alpha A - \beta C + B' - D' = 0 \\ -A - C + \gamma' B' - \delta' D' = 0; \\ B' + D' + \alpha' A' = 0; \\ \gamma' B' + \delta' D' - A' = 0 \end{cases}, \quad (6)$$

где введены обозначения

$$\begin{aligned}\alpha &= \frac{4D_s k_s}{\sigma_s \nu_s} \operatorname{tg} \frac{k_s d_s}{2} - 1; \\ \beta &= \frac{4D_s k_s}{\sigma_s \nu_s} \operatorname{ctg} \frac{k_s d_s}{2} + 1; \\ \gamma &= -\frac{4D_f k_f}{\sigma_f \nu_f} \operatorname{tg} \frac{k_f d_f}{2} + 1; \\ \delta &= \frac{4D_f k_f}{\sigma_f \nu_f} \operatorname{ctg} \frac{k_f d_f}{2} + 1\end{aligned}\quad (7)$$

а штрих рядом с буквами означает, что эта величина относится к слою S' (α') или FM' (γ', δ') (см. рис. 1), причем этот штрих появляется и у соответствующего волнового вектора k_s' или k_f' справа от знака равенства в выражениях (7). Комплексное значение последнего при $2I\tau_f \ll 1$ и $I \ll \pi T_{cs}$ зависит от константы диффузии, величины и знака обменного поля и определяется

$$\begin{aligned}k_f^2 &= (k_f')^2 = -\frac{2iI}{D_f} \\ k_f^2 &= -\frac{2iI}{D_f}; \quad (k_f')^2 = \frac{2iI}{D_f} = (k_f^2)^*\end{aligned}\quad (8)$$

соответственно при параллельной ориентации намагниченностей в слоях FM и FM', и при антипараллельной, когда магнитный ПП меняет свою фазу на π , т.е. $I' = -I$.

Полученные выражения, во-первых, включают конкуренцию между 0-фазным и π -фазным типами сверхпроводимости, которая имела место и в прежних теориях эффекта близости [9-14]. Во-вторых, они конфигурационным образом учитывают взаимодействие локализованных моментов слоев FM и FM' через сверхпроводящую прослойку S. Таким образом к известной конкуренции между 0- и π -фазной сверхпроводимостью в сверхрешетках FM/S добавляется также конкуренция между 0- и π -фазными типами магнетизма.

Параметры распаривания $D_s k_s^2$ и $D_s (k_s')^2$ должны определяться из условия нетривиальной совместности (6), а уравнение (5) на приведенную температуру t может, вообще говоря, привести к разным критическим температурам T_c и T_c' для слоев S и S' соответственно.

С физической точки зрения различие в критических температурах понятно: рассмотрим, например, конфигурацию с ферромагнитным (Ф)

порядком, когда намагниченности в слое FM и FM' параллельны друг другу, и антиферромагнитную (АФ) конфигурацию, когда они антипараллельны. Слой S' граничит с ферромагнитным слоем FM' лишь с *одной* стороны и *направление* намагниченности в слое FM' на сверхпроводящие свойства слоя S' *не влияет*, влияет только величина обменного поля I . С другой стороны очевидно, что для достаточно тонкого слоя S ($d_s < d_s^{\pi}$) в АФ конфигурации действие обменных полей будет компенсироваться, а в Ф ситуации они будут усиливать друг друга, это приводит к тому, что для слоя S $T_c(\Phi) < T_c(\text{АФ})$. Поскольку для слоя S' $T_c(\Phi) = T_c(\text{АФ})$, то, следовательно, будут отличаться и критические температуры для слоев S и S' соответственно – $T_c(S)$ и $T_c(S')$.

Определитель системы (6) удастся факторизовать и получить следующую систему уравнений на k_s и k_s' . Для Ф порядка – это случаи Фа и Фб:

$$\begin{aligned} \text{Фа} &\rightarrow \begin{cases} \alpha\gamma + 1 = 0, & \text{для слоя S} \\ \alpha'\gamma + 1 = 0, & \text{для слоя S'} \end{cases} \\ \text{Фб} &\rightarrow \begin{cases} 2\alpha\gamma\beta\delta + (\beta - \alpha)(\gamma + \delta) = 2, & \text{для слоя S} \\ \alpha'\delta + 1 = 0, & \text{для слоя S'} \end{cases} \end{aligned} \quad (9)$$

и для АФ порядка, когда согласно второму уравнению в (8) – $k_f' = k_f^*$, – случаи АФа и АФб:

$$\begin{aligned} \text{АФа} &\rightarrow \begin{cases} \alpha\beta|\gamma|^2 + (\beta - \alpha)\text{Re}\gamma = 1, & \text{для слоя S} \\ \alpha'\gamma^* + 1 = 0, & \text{для слоя S'} \end{cases} \\ \text{АФб} &\rightarrow \begin{cases} 2\alpha\gamma\beta\delta^* + (\beta - \alpha)(\gamma + \delta^*) = 2, & \text{для слоя S} \\ \alpha'\delta^* + 1 = 0, & \text{для слоя S'} \end{cases} \end{aligned} \quad (10)$$

Формально мы имеем по 4 различных фазы Фа, Фб, АФа и АФб для слоев S и S', каждая из них определяет состояние обоих слоев. Однако, легко видеть, что решения для слоя S' не зависят от относительной ориентации намагниченностей: решение второго уравнения для случая Фа совпадает с решением второго уравнения для случая АФа, то же верно и для вторых уравнений Фб и АФб. Таким образом, для слоя S' мы имеем только 2 отличающихся решения.

Более того, эти решения попадают под соответствующую классификацию известных решений для сверхрешетки [2,5,6] (см. также статью Хусаинова в этой книге). Попарно совпадающие решения для слоя S' Фа=АФа и Фб=АФб соответственно равны решениям 00 и $\pi 0$: первый символ отвечает фазе сверхпроводящего ПП, второй – фазе магнитного ПП. Для слоя S мы тоже имеем два известных решения для

сверхрешеток – это Фа, совпадающая с 00 решением, и АФа, совпадающая с 0 π решением (0-фазным по сверхпроводимости и π -фазным по магнетизму), и 2 совершенно новых решения – Фб и АФб, появление которых связано с наличием внешних граничных условий, из-за чего парные амплитуды (4а),(4d) содержат только четные косинусные решения.

В 00 состоянии $C=D'=0$ – парные амплитуды являются четными функциями относительно центров слоев S и FM', а в $\pi 0$ фазе ($C=B=0$) – $F(z, \omega)$ в слое FM' становится нечетной. В состоянии 0 π , где $D'=0$, а $B' \neq 0$ коэффициенты A и C не равны 0, т.е. парная амплитуда в S-слое четностью не обладает. Примесь синусных решений к косинусным в выражении (4б) отражает частичную компенсацию парамагнитного эффекта обменного поля I для слоя S в АФС состоянии с антипараллельной ориентацией намагниченностей соседних слоев FM.

Сверхпроводящее состояние рассматриваемой системы является результатом конкуренции четырех различных состояний для слоя S и двух состояний для слоя S'. С увеличением толщины сверхпроводящих слоев выигрыш за счет частичной компенсации парамагнитного эффекта обменного поля в АФС состоянии уменьшается и при $d_s > d_s^\pi$ становится ничтожно мал. В этом случае симметричные ФС решения 00 и $\pi 0$, приводящие к меньшим потокам куперовских пар через границы раздела S/FM, обладают немного более высокой критической температурой. Однако разница $T_c(\text{ФС}) - T_c(\text{АФС})$ при $d_s > d_s^\pi$ крайне незначительна и вряд ли интересна для практического использования.

Фазовые диаграммы и управляющие элементы

Система уравнений (5,8-10), с учетом (7), позволяет исследовать зависимость приведенных критических температур t и t' четырехслойной системы FM/S/FM'/S' от толщины сверхпроводящих (d_s) и магнитных (d_f) прослоек при различных соотношениях параметров теории σ_s , $2I\tau_f = l_f/a_f$, $n_{sf} = N_s v_s / N_f v_{fs}$, d_s/ξ_{s0} , d_f/a_f , l_s/ξ_{s0} , где $a_f = v_f/2I$ – длина спиновой жесткости.

Результат численного расчета – набор фазовых диаграмм $t(d_f)$ при специально подобранных физически наиболее интересных значениях параметров теории, когда критические температуры возможных состояний наиболее сильно отличаются, – приведен на рис.2. В частности толщина S слоя $d_s = 0.72\xi_{s0}$ была выбрана так, чтобы она находилась в рабочем интервале теории $d_s^\pi > d_s > \xi_s \sim 0.27\xi_{s0}$.

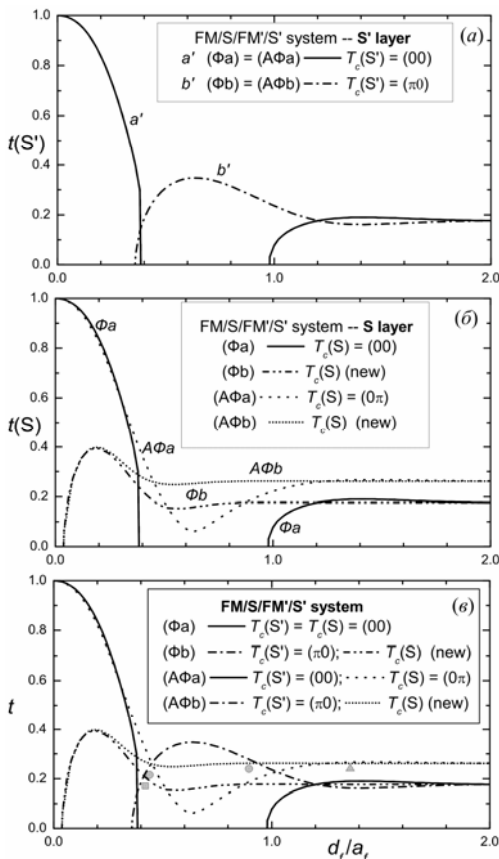


Рис.2. Зависимость приведенной критической температуры $t = T_c/T_{cs}$ четырехслойной системы FM/S/FM'/S' от приведенной толщины слоя FM d_f/a_f при следующих значениях параметров: $\sigma_s = 15$; $2It_f = 0.1$; $n_{sf} = 1.4$; $l_s = 0.25\xi_{s0}$ и $d_s = 0.72\xi_{s0}$. (a) – фазовая диаграмма слоя S', (б) – слоя S, (е) – общая для обоих слоев

На рис. 2а приведены кривые a' и b' , отвечающие состоянию слоя S'. Видно, что при величине $d_f \sim 0.38$ и $d_f \sim 1.21$ происходит переключение с 0-фазного типа сверхпроводимости на π -фазный, и обратно. На рис.2б показана конкуренция 4 различных состояний для слоя S'. Начиная примерно с $d_f \sim 0.35a_f$, кривые $A\Phi a$ и $A\Phi b$ (АФС состояния) полностью перекрывают кривые Φa и Φb , отвечающие ФС состояниям. В соответствии с теорией фазовых переходов второго рода, при данных условиях реализуется то состояние, которое обладает более низкой свободной энергией (более высокой T_c). Таким образом, в отсутствие магнитного поля, если слой S находится в сверхпроводящем состоянии, то намагниченности слоев FM и FM' будут направлены в противоположные стороны (АФ конфигурация) – это и есть результат влияния сверхпроводимости на магнетизм.

На рис. 2в сведены вместе кривые, отвечающие поведению обоих сверхпроводниковых слоев четырехслойной системы. Хорошо видно, что на фазовой диаграмме наряду со знакомыми

стандартными областями, в которых оба слоя S и S' находятся либо в нормальной (N) фазе – выше огибающей, либо в сверхпроводящей (S) фазе, существуют достаточно заметные области, в которых только один слой находится в фазе S, а другой – в N. Действительно, если система, находится под кривой $b'(S')$, но выше кривой $A\Phi b(S)$, а это возможно в диапазоне температур $0.25 < t < 0.32$ и толщин

$0.45 < d_f/a_f < 0.92$, то система приобретает такой вид FM/N/FM'/S'. На фазовой диаграмме есть такие две небольшие области, одна левее $d_f/a_f \sim 0.45$, где $A\Phi a(S)$ располагается выше кривых $a'(S')$ и $b'(S')$, а другая правее $d_f/a_f \sim 0.92$, где кривые $A\Phi b(S)$ и $A\Phi a(S)$ проходят выше $b'(S')$ и $a'(S')$, в обеих областях четырехслойная система становится FM/S/FM'/N', а если с помощью стрелок показать направление намагниченностей в FM слоях, то это состояние можно записать как $\uparrow S \downarrow N$ или $\downarrow S \uparrow N$. Наличие таких фаз у четырехслойных структур выгодно отличает их от сверхрешеток FM/S, и, тем более, от трехслойных структур FM/S/FM, и расширяет область их возможного использования.

Изучение диаграмм состояний $T_c(d_f)$ на рис. 2 помогает оптимизировать выбор параметров четырехслойной системы FM/S/FM'/S', делая возможным управление ее сверхпроводящими и магнитными состояниями, например, с помощью слабого внешнего магнитного поля. Это, в принципе, позволяет создать управляющие устройства на базе четырехслойной системы FM/S/FM'/S'. Рассмотрим несколько вариантов выбора рабочих точек. На последней диаграмме (рис. 2в) они указаны малыми серыми треугольником, квадратом и двумя кружками. Более подробно разберем схему работы устройства при выборе параметров системы, соответствующей любому из кружков ($t \approx 0.22$, $d_f \approx 0.44a_f$; или $t \approx 0.24$, $d_f \approx 0.9a_f$).

Зафиксируем ориентацию намагниченности внешнего слоя FM, например, вверх ($\uparrow$) за счет пиннинга в контакте с магнитным диэлектриком. Как мы видим из рисунка, в отсутствие магнитного поля система находится в своем основном АФС состоянии $\uparrow S \downarrow S$. Для переориентации намагниченности слоя FM' из АФ положения в Ф потребуются магнитные поля H , большие их коэрцитивного поля $H_{\text{соет}}$. Такие поля (по оценкам $H_{\text{соет}} \sim 10-100$ Э) слишком слабы для существенного изменения фазовых диаграмм четырехслойной структуры, обладающей сразу двумя каналами записи информации: на сверхпроводящем токе и на магнитном порядке. Наложением внешнего поля H , большего $H_{\text{соет}}$ и направленного по направлению поля пиннинга (по направлению намагниченности в слое FM) мы переведем систему в Ф состояние, при этом с фазовой диаграммы исчезнут все АФ кривые и система совершит переход из АФС состояния в смешанное Ф состояние: $\uparrow S \downarrow S \rightarrow \uparrow N \uparrow S$. При этом изменится информация, записанная на сверхпроводящем токе в слое S, и информация, записанная на магнитном порядке.

Если теперь подействовать на систему полем, большим критического поля H_c , то система перейдет в ФН состояние: $\uparrow N \uparrow S \rightarrow \uparrow N \uparrow N$. При этом изменится информация, записанная на сверхпроводящем токе в слое S', и сохранится информация, записанная на магнитном порядке и на резистивном токе в слое S. При выключении поля на любом шаге система вернется в исходное АФС состояние $\uparrow S \downarrow S$.

Если подействовать на систему полем, противоположной ориентации (направленным "вниз"), большим критического поля H_c , то система перейдет в

АФН состояние: $\uparrow S \downarrow S \rightarrow \uparrow N \downarrow N$. В этом случае меняется только информация, записанная на сверхпроводящих токах, а информация, записанная на взаимной ориентации намагниченностей слоев FM, сохраняется. Отметим, что выбором положения рабочей точки по отношению к кривой сверхпроводящего перехода $T_c(d_f)$ на рис.2 мы всегда можем добиться нужной величины поля H_c , сделав ее меньшей, чем поле H_p , необходимое для снятия пиннинга. Дополнительный переход $\uparrow N \downarrow N \rightarrow \downarrow N \downarrow N$ в системе FM/S/FM/S' возникает при действии поля $H > H_p$ в том же направлении "вниз". Приготовленная таким образом система S/FM/S/FM имеет уже максимальное число логически различных состояний – пять ($\uparrow S \downarrow S$, $\uparrow N \uparrow S$, $\uparrow N \uparrow N$, $\uparrow N \downarrow N$, $\downarrow N \downarrow N$).

При выборе параметров системы, соответствующей квадрату ($t \approx 0.17$, $d_f \approx 0.42a_f$), мы получим принципиальную схему, аналогичную разобранный в [2,7,8] для сверхрешеток. При последовательном изменении магнитного поля, направленного "вверх": $0 \rightarrow H_{\text{соет}} \rightarrow H_c$, имеем следующую цепочку переходов: $\uparrow S \downarrow S \rightarrow \uparrow S \uparrow S \rightarrow \uparrow N \uparrow N$. Соответственно, при изменении поля в обратном направлении: $0 \rightarrow H_c \rightarrow H_p$, имеем следующие переходы: $\uparrow S \downarrow S \rightarrow \uparrow N \downarrow N \rightarrow \downarrow N \downarrow N$. Снова мы получили цепочку из 5 различных состояний, но при этом информация записанная на сверхпроводящем токе менялась синхронно в обоих слоях S.

Наконец, при выборе параметров системы, соответствующей треугольнику ($t \approx 0.24$, $d_f \approx 1.36a_f$) мы получим "короткую" цепочку при изменении магнитного поля "вверх": $0 \rightarrow H_{\text{соет}}$, при этом $\uparrow S \downarrow N \rightarrow \uparrow N \downarrow N$. И "длинную" при изменении поля в обратном направлении: $0 \rightarrow H_c \rightarrow H_p$, $\uparrow S \downarrow N \rightarrow \uparrow N \downarrow N \rightarrow \downarrow N \downarrow N$. Всего 4 различных состояния.

Рис. 2 пригоден также для анализа диаграмм состояний $T_c(d_f)$ трехслойных структур FM/S/FM, в которых π -фазная сверхпроводимость невозможна в принципе. Для этого необходимо удалить кривые Φb и $A\Phi b$ на рис. 2б, отвечающему фазовой диаграмме слоя S (естественно, при этом в трехслойке оба слоя FM имеют одинаковую толщину $d_f/2$). Очевидно, что логически различных вариантов записи информации у трислоев FM/S/FM [3,4] (даже при найденном нами оптимальном наборе параметров) значительно меньше, чем у сверхрешеток и четырехслоев FM/S/FM/S'.

Следует заметить, что интервал параметров теории, при которых π -фазный магнетизм проявляется наиболее ярко, достаточно узок. В частности, он чрезвычайно чувствителен к параметру $2t_{\tau_f}$ и n_{sf} . Например, при $2t_{\tau_f} \approx 0.1$ и n_{sf} порядка единицы и меньше, разность $|t(A\Phi C) - t(\Phi C)|$ становится меньше 0.02 и π - и 0-магнитные состояния мультислойных систем FM/S практически неразличимы. Знание физически интересной области параметров теории, где конкуренция АФС и ФС состояний приводит к мультикритическому поведению фазовых диаграмм $T_c(d_f)$, должно помочь при отработке технологии приготовления сверхрешеток FM/S с новыми π -магнитными свойствами.

Заключение

В рамках современной теории эффекта близости последовательно рассмотрены четырехслойные системы FM/S/FM'/S', состоящие из сравнительно грязных S и FM металлов. Найдены критические температуры, проведено исследование зависимостей критических температур от толщины слоев в широком диапазоне параметров, найдена физически интересная область их значений. Доказано, что данная система может иметь различные критические температуры для слоев S и S'.

Показано, что четырехслойные системы являются наиболее перспективным кандидатом для использования в сверхпроводящей спиновой электронике. Подобные системы могут работать по нескольким принципиальным схемам, включая те, которые были разработаны ранее для трехслойных систем и сверхрешеток. С другой стороны четырехслойная система FM/S/FM'/S' имеет ряд важных преимуществ перед предложенными ранее схемами и может служить элементной базой для создания микроэлектронной аппаратуры принципиально нового типа, совмещающей преимущества и сверхпроводящего, и магнитного каналов записи информации в *одном* образце. Подчеркнем, что эти каналы могут *раздельно* управляться внешним полем.

Заметим, что преимущества таких спиновых устройств связаны с достаточно малыми размерами (толщины d_f порядка 0.5 – 5 нм, толщина $d_s \sim 25 - 80$ нм), достаточно высокой скоростью переключения (оценки [22] дают от 10^{-10} сек до 10^{-12} сек в зависимости от используемых материалов), достаточно высокими критическими токами (они примерно совпадают с токами для изолированных сверхпроводников [4]).

Автор благодарен своему Учителю Борису Ивановичу Кочелаеву за постоянную поддержку и внимание к работе. Автор также признателен постоянному соавтору последних лет Хусаинову М.Г., многие приведенные в работе результаты получены при его непосредственном участии.

Работа частично поддержана фондами РФФИ (04-0216761) и CRDF (REC-007).

Литература

1. Гинзбург В.Л. // ЖЭТФ. 1956. Т. 31. С. 202.
2. Изюмов Ю.А., Прошин Ю.Н., Хусаинов М.Г. // УФН. 2002. Т. 172. С. 113.
3. Buzdin A.I., Vedyayev A.V., Ryzhanova N.V. // Europhys.Lett.. 1999. V. 48. P. 686.
4. Tagirov L.R. // Phys. Rev. Lett. 1999 V. 83. P. 2058.
5. Хусаинов М.Г., Изюмов Ю.А., Прошин Ю.Н. // Письма в ЖЭТФ. 2001. Т. 73. С. 386.
6. Proshin Yu.N., Izyumov Yu.A., Khusainov M.G. // Phys. Rev B. 2001. V. 64, 064522.
7. Proshin Yu.N., Izyumov Yu.A., Khusainov M.G. // Supercond. Sci. Techn. 2002. V. 15, P. 285.

8. Proshin Yu.N., Izyumov Yu.A., Khusainov M.G. // *Physica C*. 2002. V. 367/1-4. P. 181.
9. Radović Z., *et al.* // *Phys. Rev. B*. 1991. V. 44. P. 759.
10. Буздин А.И., Вуйичич Б., Куприянов М.Ю. // *ЖЭТФ*. 1992. Т. 74. С. 124.
11. Khusainov M.G., Proshin Yu.N. // *Phys. Rev. B*. 1997. V. 56, P. 14283.
12. Прошин Ю.Н., Хусаинов М.Г. // *Письма в ЖЭТФ*. 1997. Т. 66. С. 527.
13. Прошин Ю.Н., Хусаинов М.Г. // *ЖЭТФ*. 1998. Т. 113. С. 1708.
14. Изюмов Ю.А., Прошин Ю.Н., Хусаинов М.Г. // *Письма в ЖЭТФ*. Т. 71, 202 2000.
15. Garifullin I.A. *et al.* // *Phys. Rev. B*. 2002. V. 66, 020505(R).
16. Ларкин А.И., Овчинников Ю.Н. // *ЖЭТФ*. 1964. Т. 47. С. 1136.
17. Fulde P., Ferrell R.A. // *Phys. Rev.* 1964. V. A135. P. 550.
18. Хусаинов М.Г. // *ЖЭТФ*. 1996. Т. 109. С. 524.
19. Хусаинов М.Г. // *ЖЭТФ*, 1996. Т. 110. С. 966.
20. Goff *at al.* // *JMMM* 240, 592 (2002)
21. Кочелаев Б.И., Тагиров Л.Р., Хусаинов М.Г. // *ЖЭТФ*. 1979. Т. 76. С. 578.
22. Clinton T.W., Johnson M. // *Appl. Phys. Lett.* 1997. V. 70. P. 1170.
23. Oh S, Youm D, Beasley M R. // *Appl.Phys.Lett.* 1997. V. 71. P. 2376.
24. Gu *at al.* // *Phys. Rev. Lett.* 2002. V. 89. 267001.
25. Хусаинов М.Г., Прошин Ю.Н. // *УФН*. 2003. Т. 173, С. 1385.

**FOUR-LAYERED FERROMAGNET –
SUPERCONDUCTOR NANOSTRUCTURES:
CRITICAL TEMPERATURES AND CONTROL DEVICES**

Yu.N. Proshin

Kazan State University, 420008 Kazan, Russia

Four-layered FM/S/FM/S' systems consisting of rather dirty superconducting (S) and ferromagnetic (FM) metals are sequentially considered on the basis of the original proximity effect theory early proposed for the artificial ferromagnetic metal/superconductor (FM/S) nanostructures. The dependences of critical temperatures on thicknesses of layers in a wide range of parameters are investigated. It is proved, this system can have different critical temperatures for layers S and S'. It is shown, that four-layered systems are the most perspective candidate for use in superconducting spin electronics and can serve element base for creation of the microelectronic equipment of essentially new type combining advantages of superconducting and magnetic record channels in one sample.

**MICROSCOPIC PHASE SEPARATION
AND TWO TYPES OF QUASIPARTICLES
IN LIGHTLY DOPED $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$
OBSERVED BY ELECTRON PARAMAGNETIC RESONANCE**

A. Shengelaya¹, M. Bruun¹, K.A. Müller¹, A. Safina², K. Conder³

¹ *Physik-Institut der Universität Zürich, Zürich CH-8057, Switzerland*

² *Kazan State University, Kazan, 420008, Russia*

³ *ETH Zürich and PSI, CH-5232 Villigen PSI, Switzerland*

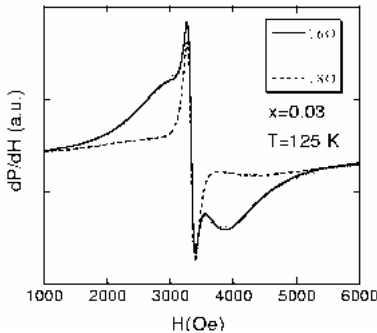
In the low doping range of x from 0.01 to 0.06 in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, we observed two electron paramagnetic resonance (EPR) signals: a narrow and a broad one. The narrow line is ascribed to metallic regions in the material, and its intensity increases exponentially upon cooling below ~ 150 K. The activation energy deduced $\Delta = 460(50)$ K is nearly the same as that found in the doped superconducting regime by Raman and neutron scattering. Obtained results provide evidence of the microscopic phase separation and two type of quasiparticles in lightly doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

The mechanism of high- T_c superconductivity (HTSC) remains enigmatic even after 17 years of its discovery [1]. It is known that HTSC is achieved when a moderate density of conducting holes is introduced in the CuO_2 planes. At a critical concentration of doping $x_{\text{cr}} \approx 0.06$, superconductivity appears. However, it is still an unresolved issue how the electronic structure evolves with hole doping from the antiferromagnetic insulator to the paramagnetic metallic and superconducting state. While most of the theoretical models assume that the holes are homogeneously doped into CuO_2 planes, there are increasing number of the experiments pointing towards highly nonuniform hole distribution leading to a formation of hole-rich and hole-poor regions [2]. This electronic phase separation is expected to be mostly pronounced at low hole concentrations. In the early experiments Johnston *et al.* analyzed the susceptibility of the $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) samples at concentrations $x < x_{\text{cr}}$ using the finite-size scaling and concluded that the material consists of antiferromagnetic (AF) domains of variable size, separated by metallic domain walls [3]. More recently Ando *et al.* corroborated this early finding by measuring the in-plane resistivity anisotropy in untwinned single crystals of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) and $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) in the lightly doped region, interpreting their results in terms of metallic stripes present [4]. Furthermore, most recently, magnetic axis rotation was reported, and points to a high mobility of the crystallographic (metallic) domain boundaries of the AFM domains [5]. The Coulomb interaction limits the spatial extension of the electronic phase separation to hole-rich and hole-poor regions to a microscopic scale [6]. Therefore it is important to use a local microscopic methods to study the electronic phase separation in cuprates.

The nuclear magnetic resonance (NMR) is one of such methods. However, in lightly doped cuprates with $x < x_{\text{cr}}$ the NMR signal from Cu wipes out due to the strong AF fluctuations and no NMR signal can be observed at low temperatures [7]. On the other hand an electron paramagnetic resonance (EPR) signal can still be observed because the time-domain of observation of EPR is two to three orders of magnitude shorter than that of NMR [8]. In order to observe an EPR signal we doped LSCO with 2% of Mn, which in the 2+ valent state gives a well defined signal and substitutes for the Cu^{2+} in the CuO_2 plane. It was shown by Kochelaev *et al.* that the Mn ions are strongly coupled to the collective motion of the Cu spins (the so called bottleneck regime) [9]. Recently we have studied the EPR of Mn^{2+} in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ in a doping range $0.06 < x < 0.20$ [8]. The bottleneck regime allowed to obtain substantial information on the dynamics of the copper electron spins in the CuO_2 plane as a function of Sr doping and oxygen isotope substitution. In the present work we performed a thorough EPR investigation of the LSCO in lightly doped range $0.01 < x < 0.06$, i.e. below x_{cr} .

The $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{O}_4$ polycrystalline samples with $0 < x < 0.06$ were prepared by the standard solid-state reaction method. The EPR measurements were performed at 9.4 GHz using a BRUKER ER-200D spectrometer equipped with an Oxford Instruments helium flow cryostat. In order to avoid a signal distortion due to skin effects, the samples were ground and the powder was suspended in paraffin. We observed an EPR signal in all samples. The signal is centered near $g \sim 2$, a value very close to the g -factor for the Mn^{2+} ion.

Fig. 1 shows the EPR lines observed in $x=0.03$ sample with different oxygen isotopes ^{16}O and ^{18}O . First, one should note that the EPR spectra consist of two lines. We found that they can be well fitted by a sum of two Lorentzian components with different linewidths: a narrow and a broad one. The second important observation is that the narrow line shows practically no isotope effect, whereas the broad line exhibits a huge isotope effect. Similar two-component EPR spectra were observed in other samples with different Sr concentrations up to $x = 0.06$. At $x = 0.06$, only a single EPR line is seen in the entire temperature range, in agreement with our previous studies of samples with $0.06 < x < 0.20$ [8].



At $x = 0.06$, only a single EPR line is seen in the entire temperature range, in agreement with our previous studies of samples with $0.06 < x < 0.20$ [8].

Fig.1. EPR signal of ^{16}O and ^{18}O samples of $\text{La}_{1.97}\text{Sr}_{0.03}\text{Cu}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{O}_4$ measured at $T = 125$ K under identical experimental conditions. The solid and dashed lines represent the best fits using a sum of two Lorentzian components with different linewidths: a narrow and a broad one

Fig.2. Temperature dependence of the narrow and broad EPR signal intensity in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{O}_4$ with different Sr dopings: (a) $x = 0.01$; (b) $x = 0.03$. The solid lines represent fits using the model described in the text

Fig. 2 shows the temperature dependence of the EPR intensity for samples with different Sr concentrations. One can see that the two EPR lines follow a completely different temperature dependence. The intensity of the broad line has a maximum and strongly decreases with decreasing temperature. On the other hand, the intensity of the narrow line is negligible at high temperatures and starts to increase almost exponentially below ~ 150 K. We note that the temperature below which the intensity of the broad line decreases shifts to lower temperatures with increasing doping. However, the shape of the $I(T)$

dependence for the *narrow line* is *practically doping-independent* and only slightly shifts towards higher temperatures with increased doping. A similar tendency is observed also for the temperature dependence of the EPR linewidth. The linewidth of the broad line and its temperature dependence are strongly doping-dependent, whereas the linewidth of the narrow line is very similar for samples with different Sr doping (see Fig. 3).

It is important to point out that the observed two-component EPR spectra are an intrinsic property of the lightly doped LSCO and are not due to conventional chemical phase separation. We examined our samples using x-ray diffraction, and detected

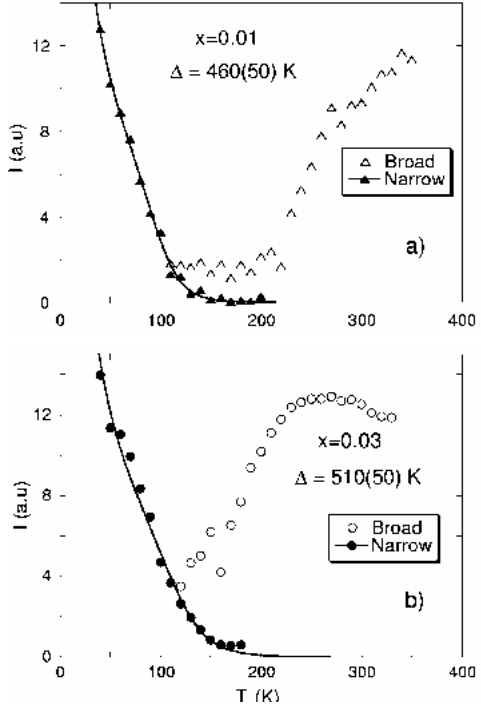
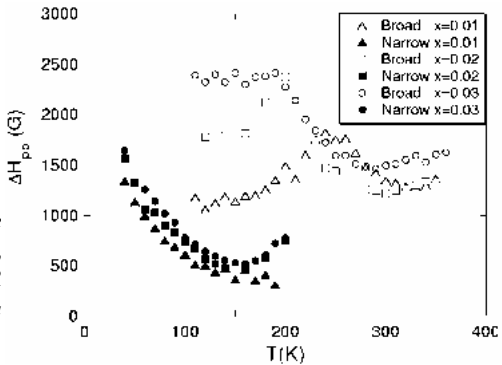


Fig. 3. Temperature dependence of the peak-to-peak linewidth ΔH_{pp} for the narrow and broad EPR lines in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{O}_4$ with $x = 0.01, 0.02$ and 0.03



no impurity phases. Moreover, the temperature dependence of the relative intensities of the two EPR signals rules out macroscopic inhomogeneities and points towards a microscopic electronic phase separation. The qualitatively different behavior of the broad and narrow EPR signals indicates that they belong to distinct regions in the sample. First we notice that the broad line vanishes at low temperatures. This can be explained by taking into account the AF order present in samples with very low Sr concentration [3]. It is expected that upon approaching the AF ordering temperature, a strong shift of the resonance frequency and an increase of the relaxation rate of the Cu spin system will occur. This will break the bottleneck regime of the Mn^{2+} ions, and as a consequence the EPR signal becomes unobservable [8].

In contrast to the broad line, the narrow signal appears at low temperatures and its intensity increases with decreasing temperature. This indicates that the narrow signal is due to the regions where the AF order is suppressed. It is known that the AF order is destroyed by the doped holes, and above $x = 0.06$ AF fluctuations are much less pronounced [10]. Therefore, it is natural to relate the narrow line to regions with locally high carrier concentration and high mobility. This assumption is strongly supported by the absence of an oxygen isotope effect on the linewidth of the narrow line as well. It was shown previously that the isotope effect on the linewidth decreases at high charge-carrier concentrations close to the optimum doping [8]. We obtain another important indication from the temperature dependence of the EPR intensity. Because we relate the narrow line to hole-rich regions, an exponential increase of its intensity at low temperatures indicates an energy gap for the existence of these regions. In the following we will argue that this phase separation is assisted by the electron-phonon coupling. More precisely, the latter induces anisotropic interactions between the holes via the phonon exchange, resulting in the creation of extended nano-scale hole-rich regions.

An interaction between holes via the phonon exchange can be written in the form [11]:

$$H_{\text{hol-phon}} = G \sum_{n\alpha} P_{n\alpha}^+ P_{n\alpha} \varepsilon_{\alpha\alpha}, \quad (1)$$

where $P_{n\alpha}^+$ is a creation operator of one polaron, $\varepsilon_{\alpha\alpha}$ is a deformation tensor, G is a coupling constant. It was shown that this interaction reduces to usual elastic forces if we neglect the retardation effects and optical modes. Following Aminov and Kochelaev [11], Orbach and Tachiki [12], we can find an interaction due to an exchange by phonons between two holes oriented along the axes α and β and separated by the space vector $\mathbf{R} = \mathbf{R}_{n\alpha} - \mathbf{R}_{m\beta}$

$$H = F(\mathbf{R}_{n\alpha} - \mathbf{R}_{m\beta}) P_{n\alpha}^+ P_{n\alpha} P_{m\beta}^+ P_{m\beta}; \quad (2)$$

$$F_{xx}(\mathbf{R}) = \frac{1}{8\pi\rho C_l^2} \frac{G^2}{R^3} [2(1-3\gamma_x^2) + \eta(12\gamma_x^2 - 15\gamma_x^4 - 1)], \quad (3)$$

$$F_{xy}(\mathbf{R}) = \frac{1}{8\pi\rho C_l^2} \frac{G^2}{R^3} (2-15\gamma_x^2\gamma_y^2). \quad (4)$$

Here C_b , C_t are longitudinal and transversal sound velocities; $\gamma_x = x/R$, $\gamma_y = y/R$; $\eta = (C_l^2 - C_t^2)/C_t^2$. This interaction is highly anisotropic being attractive for some orientations and repulsive for others [13]. The attraction between holes may result in a bipolaron formation when holes approach each other closely enough. The bipolaron formation can be a starting point for the creation of hole-rich regions by attracting of additional holes. Because of the highly anisotropic elastic forces these regions are expected to have the form of stripes. Therefore the bipolaron formation energy Δ can be considered as an energy gap for the formation of hole-rich regions.

In applying the above model to the interpretation of our EPR results we have to keep in mind that the spin dynamics of the coupled Mn-Cu system experiences a strong bottleneck regime [9]. In the bottleneck regime the collective motion of the total magnetic moment of the Mn and Cu spin system appears because the relaxation rate between the magnetic moments of the Mn and Cu ions due to the strong isotropic Mn-Cu exchange interaction is much faster than their relaxation rates to the lattice. The intensity of the joint EPR signal, being proportional to the sum of spin susceptibilities $I \sim \chi_{\text{Mn}} + \chi_{\text{Cu}}$, is determined mainly by the Mn susceptibility, since $\chi_{\text{Mn}} \gg \chi_{\text{Cu}}$ for our Mn concentration and temperature range. This results in a Curie-Weiss temperature dependence of the EPR signal.

Taking into account this remark we conclude that the EPR intensity of the narrow line is proportional to the volume of the sample occupied by the hole-rich regions because the Mn ions are randomly distributed in the sample. We expect that the volume in question is proportional to the number of bipolarons, which can be estimated in a way proposed by Mihailovic and Kabanov [14]. If the density of states is determined by $N(E) \sim E^\alpha$, the number of bipolarons is

$$N_{\text{bipol}} = \left(\sqrt{z^2 + x} - z \right)^2, \quad z = KT^{\alpha+1} \exp\left(-\frac{\Delta}{T}\right), \quad (5)$$

where Δ is the bipolaron formation energy, x is the level of hole doping, and K is a temperature- and doping-independent parameter related to the free polaron density of states. The EPR intensity from the hole-rich regions will be proportional to the product of the Curie-Weiss susceptibility of the bottlenecked Mn-Cu system and the number of the bipolarons

$$I_{\text{narrow}} \sim \frac{C}{T-\theta} N_{\text{bipol}}, \quad (6)$$

where C is the Curie constant and θ is the Curie-Weiss temperature. The experimental points for the narrow-line intensity were fitted for the two-

dimensional system ($\alpha=0$), and we used the value $\theta=-8$ K, which was found from measurements of the static magnetic susceptibility (an attempt to vary θ yielded about the same value). The values of C and θ are determined mainly by the concentration and magnetic moment of the Mn ions and their coupling with the Cu ions. Since these parameters are expected to be doping independent (or weakly dependent), they were found by fitting for the sample $x=0.01$ and then were kept constant for other concentrations leaving the only free parameter the energy gap Δ .

The results of the fit are shown in Fig. 2(a,b). For the bipolaron formation energy we obtained $\Delta = 460(50)$ K, which is practically doping-independent. This value agrees very well with the value of Δ obtained from the analysis of inelastic neutron-scattering and Raman data in cuprate superconductors [14]. Recently Kochelaev *et al.* performed theoretical calculations of the polaron interactions via the phonon field using the extended Hubbard model [13]. They estimated the bipolaron formation energy and obtained values of $100 \text{ K} < \Delta < 730 \text{ K}$, depending on the value of the Coulomb repulsion between holes on neighboring copper and oxygen sites V_{pd} , $0 < V_{pd} < 1.2 \text{ eV}$. This means that the experimental value of Δ can be understood in terms of the elastic interactions between the polarons.

It is interesting to compare our results with other experiments performed in lightly doped LSCO. Recently Ando *et al.* measured the in-plane anisotropy of the resistivity ρ_b/ρ_a in single crystals of LSCO with $x=0.02-0.04$ [4]. They found that at high temperatures the anisotropy is small, which is consistent with the weak orthorhombicity present. However, ρ_b/ρ_a grows rapidly with decreasing temperature below

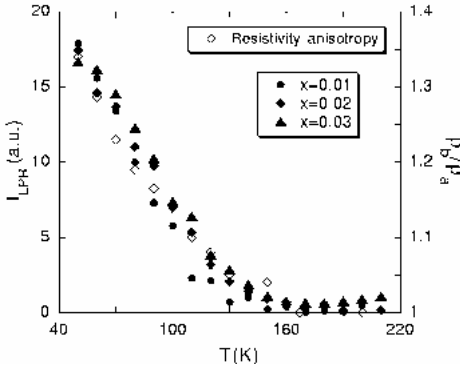


Fig. 4. Temperature dependence of the narrow EPR line intensities in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{O}_4$ and of the resistivity anisotropy ratio in $\text{La}_{1.97}\text{Sr}_{0.03}\text{CuO}_4$ obtained in Ref. 4

~ 150 K. This provides macroscopic evidence that electrons self-organize into an anisotropic state because there is no other external source to cause the in-plane anisotropy in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. We notice that the temperature dependence of the narrow EPR line intensity is very similar to that of ρ_b/ρ_a obtained by Ando *et al.* (see Fig. 2(d) in Ref. 4). To make this similarity clear, we plotted $I_{\text{narrow}}(T)$ and $\rho_b/\rho_a(T)$ on the same graph (see Fig. 4). It is remarkable that both quantities show very similar temperature

dependences. It means that our *microscopic* EPR measurements and the *macroscopic* resistivity measurements by Ando *et al.* provide evidence of the same phenomenon: the formation of hole-rich metallic stripes in lightly doped LSCO well below $x_{\text{cr}} = 0.06$. This conclusion is also supported by a recent angle-resolved photoemission (ARPES) study of LSCO which clearly demonstrated that the metallic quasiparticles exist near the nodal direction below $x = 0.06$ [16].

A number of experiments on HTSC suggest the possible existence of two quasiparticles: a heavy polaron and a light fermion [15]. In the context of the two-carrier paradigm, the narrow line in the EPR spectra may be attributed to centers with nearly undistorted environment in regions where carriers are highly mobile, whereas the broad line is due to the centers with a distorted environment and slow polaronic carriers. Recent high-resolution ARPES experiments by Lanzara *et al.* clearly showed a kink in the quasiparticle energy versus wavevector plots for different HTSC [17]. The kink at an energy of about 70 meV separates the dispersion into a high-energy part (that is, further from the Fermi energy) and a low-energy part (that is, closer to the Fermi energy) with different slopes. The two different group velocities above and below the kink are probably due to two quasiparticles with different effective masses. In this case a low-energy part of the dispersion would correspond to our narrow EPR line and the high-energy part to broad EPR line. This assumption is strongly supported by very recent isotope effect ARPES experiments by Lanzara *et al.* [18]. They observed that the high-energy quasiparticles have a strong isotope effect, while the low-energy quasiparticles show practically no isotope effect. This is in direct correspondence with our EPR results where the broad EPR line due to heavy polaronic quasiparticles shows a huge isotope effect, whereas the narrow line stemming from metallic regions has no isotope effect. Moreover, looking at Figs. 2,3 one can see that the intensity and linewidth of the narrow line is practically doping independent, while both the intensity and linewidth of broad line change strongly with the doping. This shows that the local electronic properties of the metallic regions which appear due to the microscopic phase separation and yield the narrow EPR line are the same in different samples despite different doping levels. This is again in excellent agreement with the ARPES data showing that the Fermi velocity of low-energy quasiparticles are independent of doping in different cuprate families, while the high-energy velocity varies strongly with doping [19]. Also, transport measurements showed that the mobility of charge carriers in LSCO at moderate temperatures remains the same throughout a wide doping range from the lightly-doped AF to optimally doped superconducting regime [20]. These results suggest that the electronic transport is governed by essentially the same mechanism from lightly doped to optimally doped range.

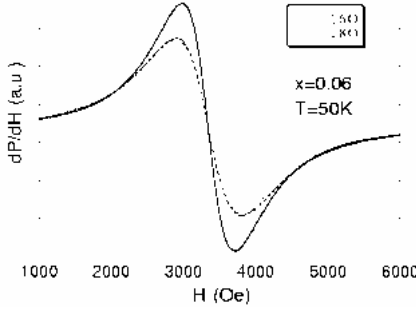


Fig. 5(a). EPR signal of ^{16}O and ^{18}O samples of $\text{La}_{1.94}\text{Sr}_{0.06}\text{Cu}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{O}_4$ measured at $T = 50 \text{ K}$ under identical experimental conditions. The solid and dashed lines represent the best fits using a single Lorentzian

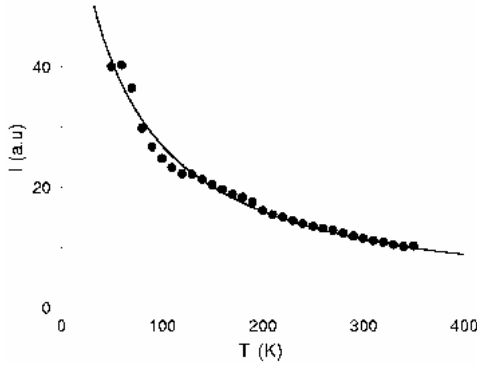


Fig. 5(b). Temperature dependence of the EPR signal intensity in of $\text{La}_{1.94}\text{Sr}_{0.06}\text{Cu}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{O}_4$. The solid line represents the fit using the Curie-Weiss temperature dependence with the Curie-Weiss temperature $\theta = 40 \text{ K}$

Figs. 5 (a, b) show the EPR spectra and intensity for the $x = 0.06$ sample. It is seen that in contrast to the $x < 0.06$ samples at $x = 0.06$ only a single EPR line is observed and the temperature dependence of the signal intensity recovers an usual Curie-Weiss behavior. On the other hand there is still a substantial isotope effect on the EPR line. To understand the change of the EPR spectra at $x = 0.06$, one should first comment on the observability of the phase separation in our EPR experiments. The main difference of the EPR signals from the hole-rich and hole-poor regions is the spin relaxation rate of the Cu spin system, which results in different EPR linewidths. One would expect these local differences of the relaxation rate to be averaged out by the spin diffusion. The spin diffusion in the CuO_2 plane is expected to be very fast because of the huge exchange integral between the Cu ions. A rough estimate shows that during the Larmor period a local spin temperature can be transported over 100 Cu-Cu distances. It means that all the different nanoscale regions will relax to the lattice with a single relaxation rate, and we cannot distinguish them with EPR. However, the AF order which appears below T_N in the hole-poor regions in lightly doped LSCO freezes the process of spin diffusion, and this is the reason we can see different EPR lines

from the two types of regions. From this we expect that with increasing doping, where magnetic order gets suppressed, spin diffusion will become faster, extended, and we can no longer distinguish different regions with EPR. This is most probably what happens in samples with $x > 0.06$, where only a single EPR line is observed [8]. This does not mean that the phase separation in hole-rich and hole-poor regions does not exist at $x > 0.06$, but that the spin diffusion averages out the EPR response from these regions. In fact, ARPES measurements showed the presence of two quasiparticles in the whole doping range [17,19], indicating that the electronic phase separation exists also at higher doping levels. Also, recent Raman and infrared measurements provided evidence of one-dimensional conductivity in LSCO with $x = 0.10$ [21].

In summary, EPR measurements in lightly doped LSCO revealed the presence of two resonance signals: a narrow and a broad one. Their behavior indicates that the narrow signal is due to hole-rich metallic regions and the broad signal due to hole-poor AF regions. The narrow-line intensity is small at high temperatures and increases exponentially below ~ 150 K. The activation energy inferred, $\Delta = 460(50)$ K, is nearly the same as that deduced from other experiments for the formation of bipolarons, pointing to the origin of the metallic stripes present. We found a remarkable similarity between the temperature dependences of the narrow-line intensity and recently measured resistivity anisotropy in CuO_2 planes in lightly doped LSCO [4]. The results obtained provide the first magnetic resonance evidence of the formation of hole-rich metallic domains in lightly doped LSCO well below $x_{c1} = 0.06$. These results also lend support to the recently proposed model of phase coherence by percolation (PSP) [22]. According to the PSP model the macroscopic phase coherence in superconducting cuprates is determined by random percolation between mesoscopic bipolarons, stripes or clusters. This simple model allows to quantitatively predict the critical carrier concentration for the occurrence of the superconductivity as well as to estimate T_c from experimentally measured values of the pairing energy.

This work is supported by SNSF under the grant 7IP062595, AS are partially supported by INTAS-01-0654 and CRDF REC-007.

References

1. J.G. Bednorz and K.A. Müller, *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
2. See, for instance, *Phase separation in Cuprate Superconductors*, edited by K.A. Müller and G. Benedek (World Scientific, Singapore, 1993).
3. J.H. Cho *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 222 (1993).
4. Y. Ando *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 137005 (2002).
5. A.N. Lavrov, S. Komiya and Y. Ando, *Nature* **418**, 385 (2002).
6. V.J. Emery and S.A. Kivelson *et al.*, *Physica C* **209**, 597 (1993).
7. T. Imai *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1002 (1993).

8. A. Shengelaya *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 144513 (2001).
9. B.I. Kochelaev *et al.*, Phys. Rev. B **49**, 13106 (1994).
10. Ch. Niedermayer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3843 (1998).
11. L.K. Aminov and B. I. Kochelaev, Zh. Eksp. Theor. Fiz. **42**, 1303 (1962).
12. R. Orbach and M. Tachiki, Phys. Rev. **158**, 524 (1967).
13. B.I. Kochelaev *et al.*, Mod. Phys. Lett. B **17**, 415 (2003).
14. V.V. Kabanov and D. Mihailovic, Phys. Rev. B **65**, 212508 (2002).
15. D. Mihailovic and K. A. Müller, in *High-Tc Superconductivity: Ten Years After the Discovery*, E. Kaldis *et al.*, eds. Kluwer Academic Publishers (1997) p. 243.
16. T. Yoshida *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 027001 (2003).
17. A. Lanzara *et al.*, Nature **412**, 510 (2001).
18. A. Lanzara *et al.*, unpublished.
19. X. J. Zhou *et al.*, Nature **423**, 398 (2003).
20. Y. Ando *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 017001 (2001).
21. F. Venturini *et al.*, Phys. Rev. B **66**, R060502 (2002).
22. D. Mihailovic *et al.*, Europhys. Lett. **57**, 254 (2002).

THEORY OF SUPERCONDUCTOR - STRONG FERROMAGNET CONTACTS

L.R. Tagirov¹, B.P. Vodopyanov²

¹*Kazan State University, 420008 Kazan, Russia*

²*Kazan Physico-Technical Institute of RAS, 420029 Kazan, Russia*

On the basis of microscopic approach we derive the Eilenberger-type equations of superconductivity for metals with exchange-split conduction band. The equations are valid for arbitrary band splitting and arbitrary spin-dependent electron mean free paths within the quasiclassic approximation. Next, we deduce general boundary conditions for the above equations. These boundary conditions take into account explicitly spin-dependence of F/S interface transparency. We apply our theory for the Andreev reflection at F/S interface and derive an expression for the Andreev conductance at zero bias. Based on experimental data and our calculations we give estimations of the conduction band spin polarization for series of ferromagnets in contact with superconductors. Next, we consider the superconducting proximity effect for a contact of a strong and clean enough ferromagnet with a dirty superconductor. Our calculations show that superconducting T_c of an F/S bilayer oscillates as a function of the F-layer thickness. At small enough superconducting layer thickness the re-entrant behavior of superconductivity is predicted. The theory gives also nonmonotonic dependence of the superconducting layer critical thickness on the spin-polarization of the ferromagnetic layer. These unconventional and distinctive features of the F/S proximity effect fit well experimental observations.

1. Introduction

At low temperatures, an electric current flows through a normal metal/superconductor (N/S) interface as a result of Andreev reflection [1]. An electron is reflected from the N/S interface as a hole into a subband with the opposite spin, and the formed Cooper pair moves through the superconductor transferring the charge $2e$. The doubling of differential conductance of a pure N/S microcontact was demonstrated theoretically in [2] (BTK) based on the solution of the Bogoliubov equations. In Ref. [3] an attention was drawn to the fact that the Andreev reflection in ferromagnet/superconductor (F/S) contacts is suppressed as the spin polarization of the ferromagnet conduction band sets up. This is associated with the fact that the Andreev reflection efficiency decreases with diminishing the number of conducting channels in the minority spin-subband (the subband with lower value of the Fermi momentum). In Refs. [4-7], it was suggested that the suppression of Andreev reflection in F/S contacts can be used for determining the spin polarization of the conduction band of ferromagnets (Andreev spectroscopy of ferromagnets). Experimental data were interpreted

making use of either general phenomenological considerations that the spin-polarized component of the normal current does not pass through the singlet superconductor [4-6], or the BTK equations semi-phenomenologically adapted to the F/S contacts [8,9]. More elaborated treatment had been proposed in Ref. [10] including the case of diffusive conductance in the vicinity of the contact. The BTK theory was generalized and applied to F/S point contacts in the theoretical works [11-13]. The expressions obtained for the Andreev conductance in the above works are not consistent with each other. Moreover, the results obtained in [11,12] do not reproduce the Andreev conductance at zero temperature, which follows from physical considerations and previous work, as we will show below. Number of experiments on Andreev spectroscopy of ferromagnets grows [8,9,14-20], what demands an adequate theoretical understanding and description.

Another motivation is the recent discussion of oscillatory phenomena in S/F contacts as a function of the ferromagnetic layer thickness [21,22]. Calculations of the local tunnelling density of states [21,22] and the superconducting transition temperature [22] do not predict oscillations if the ferromagnet is clean (with mean free path much longer than the pairing function oscillation length).

The paper summarizes our recent efforts to build a consistent quasiclassical theory of superconductor-ferromagnet contacts, as well as Andreev reflection and proximity effects for the heterogeneous structures with an interface of superconductor and strong ferromagnet [23-25]. We derive quasiclassical equations of superconductivity for metals with spin-split conduction band and deduce boundary conditions (BCs) for the quasiclassical Green's functions (GFs) at F/S interface. Next, we compute the Andreev conductance of an F/S point contact and give an estimate for the polarization of conduction bands of ferromagnetic metals from comparison with experiments on the Andreev spectroscopy. Finally, we analyze proximity effect in the superconductor - strong ferromagnet bilayer structure.

2. Equations of superconductivity and general boundary conditions

2.1. Eilenberger-type equations for a metal with exchange-split conduction band

We start from equations for equilibrium thermodynamic GFs in a matrix form [26], taking into account explicitly the spin splitting of the conduction band,

$$\left(i\varepsilon_n \tau_z + \frac{1}{2m} \frac{\partial^2}{\partial \mathbf{r}^2} + \hat{\Delta} + \hat{\mu} - U - \hat{\Sigma} \right) \hat{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \varepsilon_n) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (1)$$

Here, the Green function $\hat{G}$ and the self-energy part $\hat{\Sigma}$ are matrices of the form

$$\hat{G} = \begin{pmatrix} G_{\alpha\alpha} & F_{\alpha-\alpha} \\ -\bar{F}_{-\alpha\alpha} & \bar{G}_{-\alpha-\alpha} \end{pmatrix}, \quad \hat{\Sigma} = \begin{pmatrix} \Sigma_{\alpha\alpha} & \Sigma_{\alpha-\alpha} \\ -\bar{\Sigma}_{-\alpha\alpha} & \bar{\Sigma}_{-\alpha-\alpha} \end{pmatrix}. \quad (2)$$

In addition,

$$\hat{\Delta} = \begin{pmatrix} 0 & \Delta \\ -\Delta^* & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{\mu} = \frac{1}{2m} \begin{pmatrix} p_{F\uparrow}^2 & 0 \\ 0 & p_{F\downarrow}^2 \end{pmatrix}, \quad (3)$$

τ_α are the Pauli matrices, α is the spin index, $\varepsilon_n = (2n+1)\pi T$ is the Matsubara frequency, Δ is the order parameter, p_α^F is the Fermi momentum, U is the electron interaction energy with the electric potential, $\mathbf{r} = (x, \rho)$, and $\rho = (y, z)$. Hereafter we use the unit system at which $\hbar = c = 1$, so that we do not distinguish momentum and wave number, for example. We assume that the F/S interface coincides with the plane $x=0$. Making use the Fourier transformation with respect to the coordinate $(\rho - \rho')$ we obtain the equation for $\hat{G}(x, x') = \hat{G}(x, x', \rho_c, \mathbf{p}_\parallel, \varepsilon_n)$ $\mathbf{p}_\parallel$ is the projection of the momentum onto the contact plane, $\rho_c = (\rho + \rho')/2$ is the center-of-mass coordinate, in that follows the index "c" of ρ_c will be omitted for brevity):

$$\left(i\varepsilon_n \tau_z + \frac{1}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + i \frac{\mathbf{v}_\square}{2} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{\hat{p}_x^2}{2m} + \hat{\Delta} - U - \hat{\Sigma} \right) \hat{G}(x, x') = \delta(x - x'), \quad (4)$$

$$\frac{\hat{p}_x^2}{2m} = \hat{\mu} - \frac{\hat{p}_\parallel^2}{2m}.$$

For the $\hat{G}(x, x')$ function, we will use Zaitsev representation [27] taking into account in a systematic way the spin splitting of the conduction band. The quantities related to the metal on the left (right) side of the interface will be designated by indices 1 (2). For the sake of definiteness, we assume that the index 1 corresponds to the ferromagnet (F) and the index 2 – to the superconductor (S). Thus, for $x, x' < 0'$,

$$\begin{aligned} \hat{G} = & e^{i\hat{p}_{1x}x} \hat{G}_{11} e^{-i\hat{p}_{1x}x'} + e^{-i\hat{p}_{1x}x} \hat{G}_{22} e^{i\hat{p}_{1x}x'} \\ & + e^{i\hat{p}_{1x}x} \hat{G}_{12} e^{i\hat{p}_{1x}x'} + e^{-i\hat{p}_{1x}x} \hat{G}_{21} e^{-i\hat{p}_{1x}x'}. \end{aligned} \quad (5)$$

Here, $\hat{p}_{1x} = [\hat{p}_{1F}^2 - \hat{p}_\parallel^2]^{1/2}$; for $x, x' > 0$, $\hat{p}_{1x}$ in Eq. (5) should be changed to $\hat{p}_{2x}$. Substituting Eq. (5) into Eq. (4) and neglecting the second derivative with respect to x we obtain equations for $\hat{G}_{kn}(x, x')$:

$$\left(i\varepsilon_n \tau_z - i(-1)^k v_{1x} \frac{\partial}{\partial x} + i \frac{\mathbf{v}_\parallel}{2} \frac{\partial}{\partial \rho} + \tilde{\Delta}_k - U - \tilde{\Sigma}_k \right) \hat{G}_{kn}(x, x') = 0, \quad x \neq x'. \quad (6)$$

Here, $\tilde{\Delta}_k = e^{i(-1)^k \hat{p}_{1x}x} \hat{\Delta} e^{-i(-1)^k \hat{p}_{1x}x}$, and $\tilde{\Sigma}_k$ is determined in the same way. For $x, x' > 0$, v_{1x} in Eq. (5) should be replaced by v_{2x} . The equation conjugate to Eq. (6) is derived

Theory of superconductor - strong ferromagnet contacts

similarly. Let us pass now to the functions $\hat{g} = \hat{g}(x, x', \hat{p}_{jx})$ and $\hat{G} = \hat{G}(x, x', \hat{p}_{jx})$, which depend on the sign of the variable $\hat{p}_{jx}$ and are continuous at the point $x = x'$:

$$\hat{g} = \begin{cases} \hat{g}_> = 2i\sqrt{\hat{v}_{jx}} \hat{A}_1(x) \hat{G}_{11}(x, x') \hat{A}_1^*(x) \sqrt{\hat{v}_{jx}} - \text{sgn}(x - x'), & \hat{p}_{jx} > 0; \\ \hat{g}_< = 2i\sqrt{\hat{v}_{jx}} \hat{A}_2(x) \hat{G}_{22}(x, x') \hat{A}_2^*(x) \sqrt{\hat{v}_{jx}} + \text{sgn}(x - x'), & \hat{p}_{jx} < 0; \end{cases} \quad (7)$$

$$\hat{G} = \begin{cases} \hat{G}_> = 2i\sqrt{\hat{v}_{jx}} \hat{A}_1(x) \hat{G}_{12}(x, x') \hat{A}_2^*(x) \sqrt{\hat{v}_{jx}} - \text{sgn}(x - x'), & \hat{p}_{jx} > 0; \\ \hat{G}_< = 2i\sqrt{\hat{v}_{jx}} \hat{A}_2(x) \hat{G}_{21}(x, x') \hat{A}_1^*(x) \sqrt{\hat{v}_{jx}} + \text{sgn}(x - x'), & \hat{p}_{jx} < 0. \end{cases} \quad (8)$$

In Eq. (5) $\hat{A}_k(x) = \exp\{-i(-1)^k(\hat{p}_{jx} - \hat{\tau}_x \hat{p}_{jx} \hat{\tau}_x)x/2\}$. Let us substitute Eqs. (7) and (8) into Eq. (6) and into the equation conjugate to Eq. (6). Finding the difference (for $n=k$) and the sum (for $n \neq k$) of the resulting equations, we obtain the quasiclassical equations of superconductivity in a metal with the spin-split conduction band

$$\begin{aligned} \text{sgn}(\hat{p}_{xj}) \frac{\partial}{\partial x} \hat{g} + \frac{1}{2} \mathbf{v}_{\parallel} \frac{\partial}{\partial \rho} (\hat{v}_{xj}^{-1} \hat{g} + \hat{g} \hat{v}_{xj}^{-1}) + [\hat{K}, \hat{g}]_- &= 0, \\ \text{sgn}(\hat{p}_{xj}) \frac{\partial}{\partial x} \hat{G} + \frac{1}{2} \mathbf{v}_{\parallel} \frac{\partial}{\partial \rho} (\hat{v}_{xj}^{-1} \hat{G} - \hat{G} \hat{v}_{xj}^{-1}) + [\hat{K}, \hat{G}]_+ &= 0, \\ \hat{K} &= -i\hat{v}_{xj}^{-\frac{1}{2}}(i\varepsilon_n \tau_z + \hat{\Delta} - \hat{\Sigma})\hat{v}_{xj}^{-\frac{1}{2}} - i(\hat{p}_{xj} - \hat{\tau}_x \hat{p}_{xj} \hat{\tau}_x)/2, \\ [a, b]_{\pm} &= ab \pm ba. \end{aligned} \quad (9)$$

The impurity self-energies in Eqs. (9) are

$$\hat{\Sigma}^F = -ic |u|^2 \int \frac{d\mathbf{p}_{\parallel}}{(2\pi)^2} (\hat{v}_x)^{-\frac{1}{2}} \hat{g}^F (\hat{v}_x)^{-\frac{1}{2}}, \quad (10)$$

$$\hat{\Sigma}^S = -i \frac{1}{2\tau^S} < \hat{g}^S >, \quad \frac{1}{\tau^S} = c |u|^2 \frac{mp^S}{\pi}, \quad (11)$$

where p^S is the Fermi momentum of a superconductor, u is the interaction potential of electrons and impurities, c is the concentration of impurities, τ^S is the mean free time of electrons in a superconductor, and brackets mean averaging over the solid angle: $< \dots > = \oint d\Omega/4\pi$.

In the case of an F/S interface, as well as for an N/S interface [27], the system of quasiclassical equations arises. In addition to the functions $\hat{g}$, the functions $\hat{G}$ appear, which describe waves reflected from the interface. The above Eilenberger-type equations for the metal with the exchange-field-split conduction band had been derived for the first time in [23,24]. They are valid for arbitrary band splitting and arbitrary spin-dependent electron mean free paths within the 326

quasiclassic approximation. The system of Eqs. (9) must be supplemented with boundary conditions at F/S interface.

2.2. General boundary conditions for the Eilenberger equations

We characterize the F/S interface by the transmission coefficient, $\hat{D}$, and the reflection coefficient, $\hat{R} = 1 - \hat{D}$. In the paper, we do not consider interactions which lead to the spin flip of an electron upon its transmission through the interface. Therefore, matrices $\hat{D}$ and $\hat{R}$ have a diagonal form with respect to spin. They have the same matrix structure as $\hat{\mu}$ in Eq. (3). Taking into account the explicit form of GF given by Eq. (5), and matching the quasiclassical functions on both sides of the interface according to the procedure proposed by Zaitsev, we obtain BCs for the quasiclassical equations Eqs. (9). For $p_{\parallel} < \min(p_{\uparrow}^F, p_{\downarrow}^F, p^S)$ (here, $p_{\uparrow}^F$ and $p_{\downarrow}^F$ are the Fermi momenta of the spin-subbands of a ferromagnet) it is convenient to represent these conditions in the matrix form

$$\begin{pmatrix} \hat{a}^* & -\hat{b}^* \\ -\hat{b} & \hat{a} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_x^F \end{pmatrix}^{1/2} \begin{pmatrix} \hat{g}_{>}^F & \hat{G}_{>}^F \\ \hat{G}_{<}^F & \hat{g}_{<}^F \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_x^F \end{pmatrix}^{-1/2} = \begin{pmatrix} V_x^S \end{pmatrix}^{1/2} \begin{pmatrix} \hat{g}_{>}^S & \hat{G}_{>}^S \\ \hat{G}_{<}^S & \hat{g}_{<}^S \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_x^S \end{pmatrix}^{-1/2} \begin{pmatrix} \hat{a}^* & \hat{b}^* \\ \hat{b} & \hat{a} \end{pmatrix}. \quad (12)$$

Here $\hat{a} = \hat{d}^{-1}$, $\hat{b} = \hat{r}\hat{d}^{-1}$, $\hat{r}$ and $\hat{d}$ are the scattering amplitudes at the F/S interface [27], and the matrix $\{V_x^{F(S)}\}^{1/2}$ is the result of the direct product of the unit matrix and $\hat{v}_x^{F(S)}$. Let us pass in Eq. (12) to the functions $\tilde{g}$ and $\tilde{G}$ using the relations:

$$\begin{aligned} \tilde{g}_{>}^F &= e^{i\frac{\hat{\vartheta}_r}{2}} \hat{g}_{>}^F e^{-i\frac{\hat{\vartheta}_r}{2}}, \quad \tilde{g}_{<}^F = e^{-i\frac{\hat{\vartheta}_r}{2}} \hat{g}_{<}^F e^{i\frac{\hat{\vartheta}_r}{2}}, \\ \tilde{G}_{>}^F &= e^{i\frac{\hat{\vartheta}_r}{2}} \hat{G}_{>}^F e^{i\frac{\hat{\vartheta}_r}{2}}, \quad \tilde{G}_{<}^F = e^{-i\frac{\hat{\vartheta}_r}{2}} \hat{G}_{<}^F e^{-i\frac{\hat{\vartheta}_r}{2}}, \\ \tilde{g}_{>}^S &= e^{i\frac{\hat{\vartheta}_{rd}}{2}} \hat{g}_{>}^S e^{-i\frac{\hat{\vartheta}_{rd}}{2}}, \quad \tilde{g}_{<}^S = e^{-i\frac{\hat{\vartheta}_{rd}}{2}} \hat{g}_{<}^S e^{i\frac{\hat{\vartheta}_{rd}}{2}}, \\ \tilde{G}_{>}^S &= e^{i\frac{\hat{\vartheta}_{rd}}{2}} \hat{G}_{>}^S e^{i\frac{\hat{\vartheta}_{rd}}{2}}, \quad \tilde{G}_{<}^S = e^{-i\frac{\hat{\vartheta}_{rd}}{2}} \hat{G}_{<}^S e^{-i\frac{\hat{\vartheta}_{rd}}{2}}, \\ \hat{\vartheta}_{rd} &= \hat{\vartheta}_r/2 - \hat{\vartheta}_d, \end{aligned} \quad (13)$$

Theory of superconductor - strong ferromagnet contacts

where $\hat{\vartheta}_r$ and $\hat{\vartheta}_d$ are the scattering phases associated with the scattering amplitudes $\hat{r}$ and $\hat{d}$ at the F/S interface, respectively. Next we pass to the $\tilde{g}_{s(a)}$ and $\tilde{G}_{s(a)}$ matrices, symmetric (s) and antisymmetric (a) with respect to the variable p_{jx} :

$$\tilde{g}_{s(a)} = \frac{1}{2}[\tilde{g}_> \pm \tilde{g}_<], \quad \tilde{G}_{s(a)} = \frac{1}{2}[\tilde{G}_> \pm \tilde{G}_<]. \quad (14)$$

After this transformation the boundary conditions can be solved with respect to the $\tilde{G}_{s(a)}$ matrices and take the form:

$$\begin{aligned} (\tilde{g}_a^S)_d &= (\tilde{g}_a^F)_d, \quad (\tilde{G}_a^S)_d = (\tilde{G}_a^F)_d, \\ (\sqrt{R_\alpha} - \sqrt{R_{-\alpha}})(\tilde{G}_a^+)_n &= \alpha_3(\tilde{g}_a^-)_n, \\ (\sqrt{R_\alpha} - \sqrt{R_{-\alpha}})(\tilde{G}_a^-)_n &= \alpha_4(\tilde{g}_a^+)_n, \\ -\tilde{G}_s^- &= \sqrt{R_\alpha}(\tilde{g}_s^+)_d + \alpha_1(\tilde{g}_s^+)_n, \\ -\tilde{G}_s^+ &= \sqrt{R_\alpha}(\tilde{g}_s^-)_d + \alpha_2(\tilde{g}_s^-)_n, \end{aligned} \quad (15)$$

where $\tilde{g}_{s(a)}^\pm = 1/2[\tilde{g}_{s(a)}^S \pm \tilde{g}_{s(a)}^F]$, the $\tilde{G}_{s(a)}^\pm$ functions are determined in the same way. Indices n and d denote the diagonal and off-diagonal parts of the matrices: $\hat{T}_{d(n)} = 1/2[\hat{T} \pm \tau_z \hat{T} \tau_z]$. The coefficients α_i equal

$$\begin{aligned} \alpha_{1(2)} &= \frac{1 + \sqrt{R_\alpha R_{-\alpha}} \mp \sqrt{D_\alpha D_{-\alpha}}}{\sqrt{R_\alpha} + \sqrt{R_{-\alpha}}}, \\ \alpha_{3(4)} &= 1 - \sqrt{R_\alpha R_{-\alpha}} \pm \sqrt{D_\alpha D_{-\alpha}}. \end{aligned} \quad (16)$$

If the interference of waves arriving from neighboring interfaces can be neglected, and $\tilde{g}$ does not depend on ρ , the boundary condition containing only the function $\tilde{g}_a$ can be obtained:

$$\begin{aligned} \tilde{g}_a^+ \hat{b}_1 + \hat{b}_2 \tilde{g}_a^+ + \tilde{g}_a^- \hat{b}_3 + \hat{b}_4 \tilde{g}_a^- &= \hat{b}_3 - \hat{b}_4, \\ \tilde{g}_a^- \hat{b}_1 + \hat{b}_2 \tilde{g}_a^- + \tilde{g}_a^+ \hat{b}_3 + \hat{b}_4 \tilde{g}_a^+ &= \hat{b}_1 - \hat{b}_2. \end{aligned} \quad (17)$$

The $\hat{b}_i$ matrices equal

$$\begin{aligned} \hat{b}_1 &= \tilde{G}_s^+ \tilde{g}_s^- + \tilde{G}_s^- \tilde{g}_s^+, \quad \hat{b}_2 = \tilde{g}_s^- \tilde{G}_s^+ + \tilde{g}_s^+ \tilde{G}_s^-, \\ \hat{b}_3 &= \tilde{G}_s^+ \tilde{g}_s^+ + \tilde{G}_s^- \tilde{g}_s^-, \quad \hat{b}_4 = \tilde{g}_s^- \tilde{G}_s^- + \tilde{g}_s^+ \tilde{G}_s^+. \end{aligned} \quad (18)$$

In this case, the system of BCs consists of Eqs. (17) and the first equation of Eqs. (15). Note that only the diagonal part of the functions is continuous at the F/S

interface. These BCs take into account explicitly the spin-dependence of F/S interface. Previously quoted boundary conditions for the F/S interface can be obtained (if they are not wrong) as approximations, or limiting cases of our general BCs, Eqs. (12)-(18).

3. Andreev conductance of an F/S point contact

3.1. Basic formulas for a point contact

We consider an orifice of the radius a in an impenetrable membrane as a model for the point contact. At zero temperature, the expression for Andreev conductance G_A can be written from the following physical considerations. Let us find the current in the ferromagnet at $p_{\downarrow}^F < p^S, p_{\uparrow}^F$. Then, in the case of specular reflection from the interface, $p_{\parallel} = p_{\downarrow}^F \sin \theta_{\downarrow} = p_{\uparrow}^F \sin \theta_{\uparrow} = p^S \sin \theta^S$. The incidence angles of electrons, which can be Andreev reflected from the interface in the spin-up subband, are determined from the relationship $p_{\downarrow}^F \sin \theta_{\downarrow} = p_{\uparrow}^F \sin \theta_{\uparrow}$ and depend only on the parameter $\delta = p_{\downarrow}^F / p_{\uparrow}^F$. Electrons incident at more slanted trajectories will undergo total internal reflection. The problem becomes equivalent to the problem of finding the conductance of a point contact of normal metals with different Fermi momenta (in this case, they are $p_{\downarrow}^F$ and $p_{\uparrow}^F$) when these metals are in direct contact. Using the known solution of this problem by Zaitsev (eq. (38') in [27]), we find

$$G_A(T=0) = G_{\downarrow} \frac{8\delta(2+\delta)}{3(1+\delta)^2}, \quad G_{\downarrow} = \frac{e^2 [p_{\downarrow}^F]^2 A}{4\pi^4}, \quad (19)$$

where A is the contact area. The equations for $G_A(T=0)$ obtained in [11,12] do not coincide with this result. At $\delta=1$ (non-magnetic metal with equal $p_{\downarrow}^F$ and $p_{\uparrow}^F$), the Andreev conductance equals the doubled Sharvin conductance, which corresponds to the doubling of conductance as a result of Andreev reflection [1]. Let us now find an expression for the Andreev conductance in the case of arbitrary transmission coefficients. We start with equation for the electric current I in the linear approximation with respect to the electric field $\mathbf{E} = (E_x, 0, 0)$. The current is calculated on the ferromagnet side at $x \rightarrow 0$:

$$I_x = \frac{e^2}{2m^2} \lim_{\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'} \left(\frac{\partial}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial x'} \right) \text{Tr} \left\{ \tau_z \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \frac{1}{4\pi \cosh^2(\varepsilon/2T)} \right. \\ \left. \times \int d\mathbf{r}_1 G^R(\varepsilon, \mathbf{r}, \mathbf{r}_1) E_x(\mathbf{r}_1) \tau_z \frac{\partial}{\partial x_1} G^A(\varepsilon, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}') \right\}. \quad (20)$$

Theory of superconductor - strong ferromagnet contacts

Here, $G^{R(A)}$ is the retarded (advanced) GF, which is obtained from the temperature GFs (Eqs. (1) to (5) by substituting $\varepsilon \pm i\delta$ for $i\varepsilon_n$. Let us substitute representations given by Eqs. (5), (7) and (8) into Eq. (20). After performing the Fourier transformation with respect to the $\rho - \rho'$ coordinate, we obtain the ballistic conductance $G_{F/S}$ of an F/S point contact:

$$G_{F/S} = \frac{Ae^2}{16\pi} \text{Tr} \left\{ \tau_z \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \frac{1}{\cosh^2(\varepsilon/2T)} \int \frac{d\mathbf{p}_{\parallel}}{(2\pi)^2} \right. \\ \left. \times \left[1 - \hat{g}_s^R \tau_z \hat{g}_s^A - \hat{g}_a^R \tau_z \hat{g}_a^A + \hat{G}_s^R \tau_z \hat{G}_s^A - \hat{G}_a^R \tau_z \hat{G}_a^A \right] \right\}. \quad (21)$$

Now, we must solve the first of Eqs. (9) with the BCs given by Eq. (17). When $\hat{g}$ is independent of ρ the solution to Eq. (9) takes the form

$$\hat{g}_j = e^{-\text{sgn}(\hat{p}_{jx})\hat{K}x} \hat{C}_j(\mathbf{p}_{Fj}) e^{\text{sgn}(\hat{p}_{jx})\hat{K}x} + \hat{C}_j. \quad (22)$$

Matrices $\hat{C}_j$ represent the values of GF $\hat{g}_j$ at large distances from the F/S interface:

$$\hat{C}_2 = \begin{pmatrix} g & f \\ -f^+ & -g \end{pmatrix} = 1\sqrt{\varepsilon_n^2 + |\Delta|^2} \begin{pmatrix} \varepsilon_n & -i\Delta \\ i\Delta^* & -\varepsilon_n \end{pmatrix}. \quad (23)$$

Passing in Eq. (22) to functions $\hat{g}_s^{\pm}$, substituting them into the system of BCs given by Eqs. (17), and solving them in the linear approximation with respect to $\hat{C}_a^{\pm} = 1/2[\hat{C}_a^S \pm \hat{C}_a^F]$ we find the Andreev conductance G_A of the F/S point contact:

$$G_A = G_{F/S}(V=0) = \frac{Ae^2}{4\pi} \int_0^{\Delta} d\varepsilon \frac{1}{\cosh^2(\varepsilon/2T)} \\ \times \int \frac{d\mathbf{p}_{\parallel}}{(2\pi)^2} \frac{4|\Delta|^2 D_{\downarrow} D_{\uparrow}}{(1 + \sqrt{R_{\downarrow} R_{\uparrow}})^2 |\Delta|^2 - 4\sqrt{R_{\downarrow} R_{\uparrow}} \varepsilon^2}. \quad (24)$$

It depends on the relationship between the Fermi momenta $p_{\downarrow}^F$, $p_{\uparrow}^F$, and p^S . Thus, at $p_{\downarrow}^F < p^S < p_{\uparrow}^F$, the expression for G_A takes the form:

$$G_A = \frac{Ae^2(p_{\downarrow}^F)|\Delta|}{4\pi^2 T} \int_0^1 dx \frac{1}{\cosh^2\left(\frac{|\Delta|}{2T}x\right)} \\ \times \int_0^{\pi/2} d\theta_{\downarrow} \frac{D_{\downarrow} D_{\uparrow} \sin(2\theta_{\downarrow})}{(1 + \sqrt{R_{\downarrow} R_{\uparrow}})^2 - 4\sqrt{R_{\downarrow} R_{\uparrow}} x^2}. \quad (25)$$

In the case of a nonmagnetic metal, where $D_{\downarrow} = D_{\uparrow}$, the expression for the Andreev conductance obtained in Ref. [27] follows from Eq. (25).

3.2. Discussion of experiments on the Andreev spectroscopy

The ratio of G_A to $G_{F/N}$, where $G_{F/N}$ is the conductance of an F/S contact in the normal state, is given in [4-8]. In our approach the latter quantity is

$$G_{F/N}(V=0) = \frac{Ae^2(p_{\downarrow}^F)^2}{8\pi^2} \int_0^{\pi/2} d\theta_{\downarrow} \sin(2\theta_{\downarrow}) D_{\downarrow} + \frac{Ae^2(p_{\downarrow}^S)^2}{8\pi^2} \int_0^{\pi/2} d\theta_N \sin(2\theta_N) D_{\downarrow}. \quad (26)$$

Eqs. (24)–(26) are valid for arbitrary transmission coefficients D_a . For particular calculations we use the model expressions for the transmission coefficients corresponding to the direct contact between S and F metals:

$$D_{\uparrow} = \frac{4p_{x\uparrow}p_x^S}{(p_{x\uparrow} + p_x^S)^2}, \quad D_{\downarrow} = \frac{4p_{x\downarrow}p_x^S}{(p_{x\downarrow} + p_x^S)^2}. \quad (27)$$

With these transmission coefficients, $G_A(T=0)$ and $G_{F/N}$ can be calculated analytically:

$$G_{F/N} = \frac{Ae^2(p^S)^2}{6\pi^2} \left[\frac{\delta_{\uparrow}^N(1 + \delta_{\uparrow}^N)}{(1 + \delta_{\uparrow}^N)^2} + \frac{(\delta_{\downarrow}^N)^3(2 + \delta_{\downarrow}^N)}{(1 + \delta_{\downarrow}^N)^2} \right], \quad (28)$$

for $G_A(T=0)$ the expression (19) is obtained. Here, $\delta_{\uparrow}^N = p^S/p_{\uparrow}^F$ and $\delta_{\downarrow}^N = p_{\downarrow}^F/p^S$. From Eqs. (19) and (28) it follows that the Andreev conductance at $\delta < 0.26$ becomes smaller than the conductance of the contact in the normal state. Dependence of the ratio $G_A(T=0)/G_{F/N}$ on the parameter δ is given for various temperatures in Fig. 1. The ratio $\Delta/2T = 5.5$ corresponds to the experimental conditions [5] ($T = 1.6$ K, $\Delta_{Nb} = 1.5$ meV). In order to interpret universally the experimental data obtained in [5] for a series of ferromagnetic

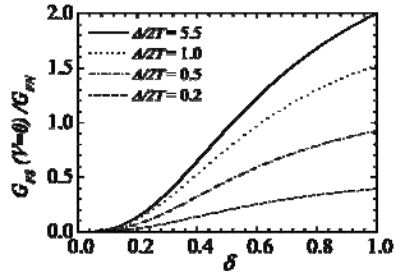


Fig. 1. Dependence of the normalized Andreev conductance on the ratio δ of the Fermi momenta of spin subbands of the ferromagnet's conduction band ($\delta = p_{\downarrow}^F/p_{\uparrow}^F$)

Theory of superconductor - strong ferromagnet contacts

materials in contact with superconducting Nb, we fixed the Fermi momentum of the superconducting metal by the equation $(p^S)^2 = \frac{1}{2}[(p_\uparrow^F)^2 + (p_\downarrow^F)^2] = \text{const.}$ Now, the values of δ (abscissa) can be estimated by the value of the reduced conductance at zero voltage across the contact (ordinate). Emphasize that in this calculation we assumed absence of an oxide or similar barrier at the F/S interface ($Z_{BTK} = 0$). The estimated results for δ are given in the Table.

Table

Material under study [5]	δ	P_c (%)	P_c (%) [5]
NiFe	0.64	42	37±5.0
Co	0.55	52	42±2.0
NiMnSb	0.48	63	58±2.3
LMSO	0.31	83	78±4.0
CrO2	0.18	94	90±3.6

Note that our values $\delta(\text{Ni}) = 0.64$ (from data of Ref. [6]) and $\delta(\text{Co}) = 0.55$ obtained from the Andreev spectroscopy turned out to be close to the upper estimates for $\delta(\text{Ni}) = 0.64$ and $\delta(\text{Co}) = 0.57$, which we obtained in Ref. [28] from the data on the giant magnetoresistance in magnetic point contacts [29].

Let us now compare our results with the original estimates of polarization obtained in [5] (see the last column of the Table). The authors argue that the normalized conductance measured in their work depends on polarization as $G_{F/S}/G_n = 2(1 - P_I)$ (Eqs. (4)-(6) in [5]), where $P_I = (I_\uparrow - I_\downarrow)/(I_\uparrow + I_\downarrow)$ and $G_n \simeq G_{F/N}$ is the conductance at high voltages across the contact ($eV \gg \Delta$). In the course of discussion, the authors identified the current polarization P_I with the contact polarization $P_c = (N_\uparrow v_\uparrow^F - N_\downarrow v_\downarrow^F)/(N_\uparrow v_\uparrow^F + N_\downarrow v_\downarrow^F) = (1 - \delta^2)/(1 + \delta^2)$, where N_α and v_α are the density of states and the Fermi velocity in the α -spin subband of the ferromagnet, respectively. This identification is not quite correct, because it implicitly assumes independence of the total current $I_\uparrow + I_\downarrow$ through the contact in the normal phase from the spin polarization of the ferromagnet. It is evident from Eq. (28) that $G_{F/N}$ essentially depends on δ . As a result, the reduced conductance $G_{F/N}(V=0)/G_{F/N}$ is the nonlinear function of the contact polarization P_c (Fig. 2). It is seen from

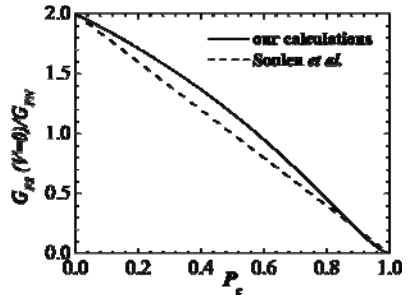


Fig. 2. Dependence of the normalized Andreev conductance on the contact polarization P_c

Fig.2 that identification of P_I with P_c leads to a systematic underestimation of the P_c values extracted from experiment (compare the third and the fourth columns of the Table). Note here, that numerical calculations of the conductance at zero voltage performed in [13] (see Fig. 4 of that work for $Z=0$, $T/T_c=0.2$) fit well the linear dependence on the contact polarization proposed in [5] (dash line in our Fig. 2). From this observation it follows that calculations made in [13] also give underestimated values of the contact polarization taken from the conductance at zero voltage. Our theory allows to estimate the polarization parameter δ of the ferromagnet's conduction band, through which the polarization of the density of states P_{DOS} , the tunnelling polarization P_T , and the contact polarization P_c are expressed. Our analysis of experiments on Andreev spectroscopy leads to values of P_c that systematically higher than those estimated previously.

4. The superconductor - strong ferromagnet proximity effect

The ferromagnet-superconductor contacts are interesting not only as a tool to measure conduction band polarization of ferromagnets, but also as a unique combination of materials to build π -contacts [30] and superconducting logic circuits [31,32]. The physics behind the π -contacts is the unconventional Larkin-Ovchinnikov-Fulde-Ferrell (LOFF) pairing in ferromagnetic superconductors [33,34], which manifests itself in F/S contacts by oscillations of the superconducting transition temperature [35,36], tunnelling density of states [37], Josephson current [38-41] as a function of F-layer thickness or temperature. The realization of the LOFF-like pairing in weak ferromagnets (ferromagnetic alloys having low Curie temperatures ~ 100 K) is certainly proved [32,37-39,41]. The case of the contacts of superconductors with strong ferromagnets, like Fe, Co, Ni, is still questionable. In fact, there are calculations of the local tunnelling density of states [21,22] and the superconducting transition temperature [22], which do not predict oscillations of the above mentioned quantities, if the ferromagnet is clean (with mean free path much longer than the pairing function oscillation length). Direct experimental verification is very difficult, because one needs ultra-thin, few monolayers thick, ferromagnetic films of excellent quality. In the section below we show, that in the case of clean enough ferromagnets the critical temperature still oscillates as a function of the F-layer thickness.

4.1. Boundary conditions for the "dirty" superconductor - strong ferromagnet bilayer

To find quasiclassic Green functions at the F/S interface one needs to solve the Eilenberger-type equations (9) for the every metal in a contact. Near the transition temperature the equations can be linearized with respect to the anomalous Green function $\hat{f}^{S(F)}$:

$$\hat{g}^{S(F)} = \frac{\varepsilon_n}{|\varepsilon_n|} \tau_z + \hat{f}^{S(F)}, \quad \hat{f}^{S(F)} = \begin{pmatrix} 0 & f_{\uparrow\downarrow}^{S(F)} \\ -\bar{f}_{\uparrow\downarrow}^{S(F)} & 0 \end{pmatrix}. \quad (29)$$

Theory of superconductor - strong ferromagnet contacts

Then, the first of equations in (9), applied to the superconductor homogeneous in the plane of the contact, reads

$$l_x^2 \frac{\partial^2}{\partial x^2} \hat{f}_s^S - (\lambda^S)^2 \hat{f}_s^S + \lambda^S < \hat{f}_s^S > = 2i\lambda^S \tau^S \hat{\Delta}, \quad (30)$$

$$l_x \frac{\partial \hat{f}_s^S}{\partial x} = -\lambda^S \text{sgn}(\varepsilon_n) \tau_z \hat{f}_a^S,$$

where $l_x^S = |v_x^S| \tau^S$ is the component of the mean free path along the normal to the contact plane. Analogously, we deduce the equations to find GF $\hat{f}_s^F$ and $\hat{f}_a^F$ for the ferromagnet:

$$\left(\frac{2l_{x\uparrow}l_{x\downarrow}}{l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow}} \right)^2 \frac{\partial^2}{\partial x^2} \hat{f}_s^F - (\lambda^F)^2 \hat{f}_s^F = -\frac{2\sqrt{v_{x\uparrow}v_{x\downarrow}}}{l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow}} \tau_{\uparrow}\tau_{\downarrow} \lambda^F \left\langle \frac{1}{\tau_{\uparrow\downarrow}} \hat{f}_s^F \right\rangle, \quad (31)$$

$$\hat{f}_a^F = -\text{sgn}(\varepsilon_n) \frac{2l_{x\uparrow}l_{x\downarrow} \lambda^F}{(l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow})} \tau_z \frac{\partial}{\partial x} \hat{f}_s^F,$$

where

$$\lambda^F = 1 + \frac{2\tau_{\uparrow}\tau_{\downarrow}(v_{x\uparrow} + v_{x\downarrow})}{l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow}} |\varepsilon_n| - i \frac{2l_{x\uparrow}l_{x\downarrow}}{l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow}} (p_{x\uparrow} - p_{x\downarrow}) \text{sgn}(\varepsilon_n), \quad (32)$$

$$< \frac{1}{\tau_{\uparrow\downarrow}} \hat{f}_s^F > = c |u|^2 \int \frac{d\mathbf{p}_{\parallel}}{(2\pi)^2} \frac{1}{\sqrt{v_{x\uparrow}v_{x\downarrow}}} \hat{f}_s^F.$$

In the above $l_{x\alpha} = |v_{x\alpha}^F| \tau_{\alpha}^F$, τ_{α}^F is the mean free path in the α -th spin-subband of the ferromagnet. In the second line of (32) the angular integration is constrained [42] to fulfil the specular scattering condition:

$$p_{\parallel} = p_{\downarrow}^F \sin \theta_{\downarrow} = p_{\uparrow}^F \sin \theta_{\uparrow} = p^S \sin \theta^S. \quad (33)$$

In Eqs. (31)-(33) and hereafter $p_{\uparrow}^F$ and $p_{\downarrow}^F$ are the Fermi momenta of the spin-subbands of the ferromagnet.

Solution of Eq. (30) with the boundary condition $\hat{f}_a^S(x \rightarrow \infty) = 0$ reads:

$$\hat{f}_s^S(x) = \text{sgn}(\varepsilon_n) \tau_z \hat{f}_a^S(x) + \frac{1}{l_x^S} \int_x^\infty d\xi e^{-\frac{\lambda^S(\xi-x)}{l_x^S}} [< \hat{f}_s^S(\xi) > - 2i\tau^S \hat{\Delta}(\xi)]. \quad (34)$$

In the equation (34) the integrand in the square parentheses has the spatial range $\xi_T^S = (D^S/2\pi T)^{1/2} \gg l^S$, where $D^S = v^S l^S/3$ is the diffusion coefficient of electrons in a superconductor. Expanding the slow varying function around the point $\xi = x$ and taking it out of the integral we obtain $\hat{f}_s^S(x)$:

$$\hat{f}_s^S(x) = \text{sgn}(\varepsilon_n) \tau_z \hat{f}_a^S(x) + \frac{1}{\lambda^S} \left(1 + l_x^S \lambda^S \frac{d}{dx} \right) < \hat{f}_s^S(x) >. \quad (35)$$

Solution for the ferromagnet is sought in the form:

$$\hat{f}_s^F(x) = C^F(\theta_\downarrow) \cosh \kappa^F(\theta_\downarrow)(x + d^F), \quad (36)$$

where

$$\begin{aligned} \kappa^F(\theta_\downarrow) &= \kappa_1^F(\theta_\downarrow) + i \text{sgn}(\varepsilon_n) \kappa_2^F(\theta_\downarrow), \\ \kappa_1^F(\theta_\downarrow) &= (1 - \eta_1) \frac{l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow}}{2l_{x\uparrow} l_{x\downarrow}} + \frac{v_{x\uparrow} + v_{x\downarrow}}{2v_{x\uparrow} v_{x\downarrow}} | \varepsilon_n |, \\ \kappa_2^F(\theta_\downarrow) &= | p_{x\uparrow} - p_{x\downarrow} | + \eta_2 \frac{l_\uparrow^F + l_\downarrow^F}{l_\uparrow^F l_\downarrow^F}. \end{aligned} \quad (37)$$

In the equations (37), the quantities η_1 and η_2 do not depend on the angles $\theta_\downarrow$ and $\theta_\uparrow$. As in the above Sections we assume $p_\uparrow^F > p_\downarrow^F$. Substituting the solution (36) into the equation (31) one obtains the integral equation to find η_1 and η_2 :

$$\frac{2l_\uparrow}{p_\downarrow^F p_\uparrow^F} \int \frac{d\mathbf{p}_\parallel}{2\pi} \frac{\lambda^F(l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow})}{(\lambda^F)^2(l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow})^2 - (2l_{x\uparrow} l_{x\downarrow})^2 (\kappa^F)^2} = 1. \quad (38)$$

For the strong ferromagnet the solution of the above equation is (the relative accuracy is $\{p_\uparrow^F l_\uparrow^F\}^{-1} \ll 1$):

$$\eta_1 = \frac{l_\uparrow}{p_\downarrow^F p_\uparrow^F} \int \frac{d\mathbf{p}_\parallel}{2\pi} \frac{1}{l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow}}, \eta_2 = 0. \quad (39)$$

Satisfying the boundary conditions (17) we obtain $\hat{f}_a^S(0)$ and $\hat{f}_a^F(0)$:

$$\begin{aligned} \hat{f}_a^S(0) &= -\text{sgn}(\varepsilon_n) \tau_z \frac{B}{\lambda^S} \left(1 + \frac{l_x^S}{\lambda^S} \frac{d}{dx} \right) < \hat{f}_s^S(x) >, \\ \hat{f}_a^F(0) &= -2 \text{sgn}(\varepsilon_n) \tau_z \frac{\sqrt{D_\uparrow D_\downarrow}}{\Gamma \lambda^S} \left(1 + \frac{l_x^S}{\lambda^S} \frac{d}{dx} \right) < \hat{f}_s^S(x) >, \end{aligned} \quad (40)$$

where

$$\begin{aligned}
 B &= \frac{\Gamma^S}{\Gamma}, \\
 \Gamma^S &= D_{\uparrow} + D_{\downarrow} + (\sqrt{R_{\uparrow}} - \sqrt{R_{\downarrow}})^2 \nu^F, \\
 \Gamma &= 2 \left[1 + \sqrt{R_{\uparrow} R_{\downarrow}} + (1 - \sqrt{R_{\uparrow} R_{\downarrow}}) \nu^F \right], \\
 \nu^F &= \frac{\lambda^F (l_{x\uparrow} + l_{x\downarrow})}{2 l_{x\uparrow} l_{x\downarrow} \kappa^F \tanh(\kappa^F d^F)}.
 \end{aligned} \tag{41}$$

In deriving the above equations we neglected spin-dependence of the phases of the scattering amplitudes in the general boundary conditions Eqs. (17).

To formulate particular BC for the contact of a strong ferromagnet with a dirty superconductor we use the Ansatz proposed in Ref. [43]: at distances of the order of the mean free path $l_{\uparrow}^F/l_{\uparrow}^F = 2.5$, in a superconductor, when the terms proportional to $\xi^S/\xi_{BCS}^S = 0.25$ and $\xi^S = (D^S/2\pi T_{c0})^{1/2}$ can be neglected, one may write down

$$\langle \cos(\theta^S) \hat{f}^S \rangle = \frac{1}{2} \int_0^{\pi/2} d\theta^S \sin(2\theta^S) \hat{f}_a^S = \hat{C}^S, \tag{42}$$

where T_c is constant. This constant can be found substituting into Eq. (42) the antisymmetric combination

$$\hat{f}_a^S = -\hat{\tau}_z \text{sgn}(\varepsilon_n) l_x^S \frac{d}{dx} < \hat{f}_s^S >,$$

which corresponds to the solution of the Usadel equation [44] for the "dirty" superconductor far away from the F/S interface. The result is:

$$\hat{C}^S = -\hat{\tau}_z \text{sgn}(\varepsilon_n) \frac{1}{3} l^S \frac{d}{dx} < \hat{f}_s^S >. \tag{43}$$

Now, we calculate the same constant with the use of the function $\hat{f}_a^S(0)$ taken from the equation (40) above, and obtain the boundary condition for the averaged over the solid angle GF, $\hat{F}_s^S(x) = < \hat{f}_s^S > :$

$$\begin{aligned}
 l^S \frac{d}{dx} \hat{F}_s^S(x) &= \gamma \hat{F}_s^S(x), \quad \gamma = \frac{\gamma_1}{1 - \gamma_2}, \\
 \gamma_1 &= \frac{3}{2} \int_0^\varphi d\theta^S \sin(2\theta^S) B, \quad \gamma_2 = \frac{3}{2} \int_0^\varphi d\theta^S \cos(\theta^S) \sin(2\theta^S) B.
 \end{aligned} \tag{44}$$

The upper limit in Eq. (44) depends on the relation between the Fermi momenta of contacting metals, and is determined from conservation of the parallel component of the transferred momentum (33). If the Fermi momentum p^S is the smallest of three, $\varphi = \pi/2$. The quantity B is determined in Eq. (41), it is a function of the angles θ^S and $\theta_\downarrow$, which obey the scattering specularity condition (33). The boundary condition (44) is valid for the dirty superconductor - strong ferromagnet interface at arbitrary transparency.

4.2. Critical temperature of F/S bilayer

To find the superconducting transition temperature T_c of the bilayer we solve the linearized Usadel equation at temperatures close to T_c :

$$D^S \frac{d^2}{dx^2} \hat{F}_s^S - 2 |\varepsilon_n| \hat{F}_s^S = 2i\hat{\Delta}, \quad (45)$$

and satisfy with this solution the boundary condition (44). The problem is easily solved in the single-mode approximation [45], which is valid at intermediate suppressions of T_c against unperturbed transition temperature of the isolated superconducting film, T_{c0} :

$$\hat{F}_s^S = -\frac{2i\hat{\Delta}}{|\varepsilon_n| + D(\kappa^S)^2}, \quad \hat{\Delta} = \hat{\Delta}_0 \cos[\kappa^S(x - d^S)], \quad (46)$$

where κ^S is determined from BC (44):

$$l^S \kappa^S \tan(\kappa^S d^S) = \gamma. \quad (47)$$

Substituting (46) into the self-consistency equation,

$$\hat{\Delta} \ln(t_c) = \pi T_c \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left(i \hat{F}_s^S - \frac{\hat{\Delta}}{|\varepsilon_n|} \right); \quad t_c = \frac{T_c}{T_{c0}}, \quad (48)$$

one finally gets the equation for finding the transition temperature of the dirty superconductor - strong ferromagnet bilayer:

$$\ln(t_c) = \Psi\left(\frac{1}{2}\right) - Re \Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{\rho}{t_c}\right), \quad (49)$$

$$\rho = \frac{D^S (\kappa^S)^2}{4\pi T_{c0}}.$$

4.3. Results and discussion of proximity effect

Upon solution of the equation (49) we will neglect dependence of κ^S on ε_n , because we consider strong ferromagnet with energy of the exchange splitting of conduction band which is much larger than the thermal energy. As is was done in the discussion of experiments on Andreev spectroscopy, we fix the Fermi momentum of the superconductor by the relation $(p^S)^2 = \frac{1}{2}[(p_{\uparrow}^F)^2 + (p_{\downarrow}^F)^2] = const$, and use the above formulas (27) to evaluate the interface transmission coefficients.

The results of calculations for the set of parameters: $\delta = p_{\downarrow}^F/p_{\uparrow}^F = 0.65$, $p_{\uparrow}^F l_{\uparrow}^F = 40.0$, $l_{\uparrow}^F/l_{\downarrow}^F = 2.5$, $\xi^S/\xi_{BCS}^S = 0.25$ [$\xi^S = (D^S/2\pi T_{c0})^{1/2}$ - is the coherence length of dirty superconductor] are displayed in Fig. 3. The parameters approximately correspond to the contact of nickel with niobium or vanadium. The figure shows damped oscillations of transition temperature as a function of the ferromagnetic layer thickness. As the superconducting layer becomes thin enough, the re-entrant behavior of the superconducting transition temperature is possible (the lower, solid curve on Fig. 3), which has been observed in the experiment [46,47]. The results for the another calculation with only the exchange splitting parameter is changed, $\delta = p_{\downarrow}^F/p_{\uparrow}^F = 0.55$ (this corresponds approximately to cobalt), are displayed in Fig. 4. Comparison with the previous figure shows that superconducting T_c suppression is weakened in the contact with the stronger ferromagnet ($\delta(\text{Co}) < \delta(\text{Ni})$), which seems to contradict expectation. However, one should keep in mind that when conduction band polarization growths, the interface transparency decreases as a result of increasing mismatch between Fermi momenta of the superconductor and the ferromagnet. Growing isolation of S and F layers dominates the increase of depairing influence of the exchange field. This scenario has been realized in the layered system Fe_xV_{1-x}/V [48]. With increasing the iron content x in the ferromagnetic alloy Fe_xV_{1-x} the non-monotonic behavior of the superconductor critical thickness was observed at fixed thickness of the ferromagnetic layer. The pure iron layer suppressed T_c weaker than the alloy with the iron concentration $x \simeq 0.6$. Our calculations take into account explicitly the dependence of the interface transparency on the conduction-band exchange splitting, giving the theoretical basis for the extensive discussions of the F/S interface transparency based on the experimental data [42,46-49]. Our results do not contradict conclusions by Bergeret *et al.* [22]: Figs. 1 and 2 show that at small T_c suppression, when $T_{c0} - T_c \ll T_{c0}$, and for $d^F > l_{\uparrow}^F$, the oscillations amplitude is considerably smaller than the asymptotic value of the suppression, $\delta T_c = T_{c0} - T_c (d^F \rightarrow \infty)$

(see upper curves in Figs. 3 and 4). Thus, the oscillations of T_c are beyond the approximation adopted in Ref. [22].

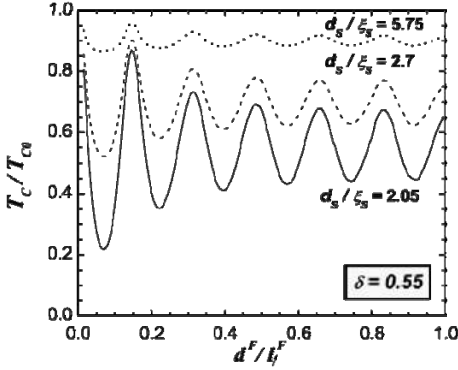


Fig. 3. Dependence of the superconducting critical temperature of F/S bilayer on the thickness of the ferromagnetic layer at $\delta = 0.65$. Values of other parameters are given in the text

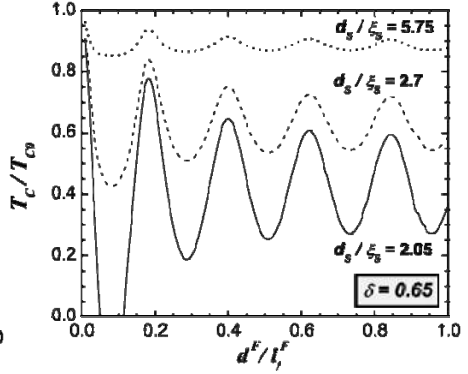


Fig. 4. Dependence of the superconducting critical temperature of F/S bilayer on the thickness of the ferromagnetic layer at $\delta = 0.55$. Values of other parameters are the same as in Fig. 3

It is interesting to note, that at certain thickness of the F-layer the decrement of T_c oscillations decay does not increase when decreasing the mean free paths l_α^F , as it could be expected, but decreases. This unusual behavior is explained by exclusion of slanted trajectories, along which the path of electrons inside the ferromagnetic film exceeds their mean free path. In the certain range of the thickness d^F the effect of closing the cone of effective trajectories, which couple F and S layers, dominates over their decay because of scattering. As the thickness d^F approaches mean free paths, the cone of effective trajectories collapses toward the film normal, and solution of the problem approaches the single-exponential one [42].

5. Conclusion

In this paper we summarized results of our theoretical studies of the contacts of superconductors with strong ferromagnets. On the basis of microscopic approach we derived for the first time the Eilenberger-type equations of superconductivity for metals with exchange-split conduction band. The equations are valid for arbitrary band splitting and arbitrary spin-dependent electron mean free paths within the quasiclassic approximation. As a next step, we deduced general boundary conditions for the above equations. These BCs take into account explicitly the spin-dependence of F/S interface transparency. All other correct

formulations of the boundary conditions for the F/S interface can be obtained as approximations, or limiting cases of our general BC.

We applied further our theory for the Andreev reflection at F/S interface and derived an original expression for the Andreev conductance. Our expression takes into account explicitly spin dependence of the interface transparency and spin-dependent conservation laws at scattering on the F/S interface. Based on the experimental data and our calculations we give estimations of the conduction-band spin polarization for series of ferromagnets in contact with superconductors.

Next, we considered the superconducting proximity for contact of strong and clean enough ferromagnet (electron mean free paths much longer than the oscillation period of the pairing function) with dirty (short mean free path) superconductor. We showed that superconducting T_c of the F/S bilayer oscillates as a function of the F-layer thickness. At small enough superconducting layer thickness the re-entrant behavior of superconductivity is predicted. The theory takes into account explicitly the spin dependence of the interface transparency, which results in non-monotonic dependence of the superconducting layer critical thickness on the spin polarization of the ferromagnetic layer. These unconventional and distinctive features of the F/S proximity effect fit qualitatively experimental observations.

Acknowledgments

The work was supported by the Russian Foundation for Basic Research (grants No. 03-02-17432 and No. 03-02-17656).

References

1. A.F. Andreev, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **46**, 1823 (1964) [Sov. Phys. JETP **19**, 1228 (1964)].
2. G.E. Blonder, M. Tinkham, T.M. Klapwijk, Phys. Rev. B **25**, 4515 (1982).
3. M.J.M. de Jong and C.W.J. Beenakker, Phys. Rev. Lett. **74**, 1657 (1995).
4. S.K. Upadhyay, A. Palanisami, R.N. Louie, R.A. Buhrman, Phys. Rev. Lett. **81**, 3247 (1998).
5. R.J. Soulen, J.M. Byers, M.S. Osofsky, *et al.*, Science **282**, 85 (1998); J. Appl. Phys. **85**, 4589 (1999).
6. B. Nadgorny, R.J. Soulen, M.S. Osofsky *et al.*, Phys. Rev. B **61**, 3788(R) (2000).
7. M.S. Osofsky, B. Nadgorny, R.J. Soulen *et al.* J. Appl. Phys. **85**, 5567 (1999).
8. Y. Ji, G.J. Strijkers, F.Y. Yang, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 5585 (2001).
9. G.J. Strijkers, Y. Ji, F.Y. Yang, C.L. Chien, Phys. Rev. B **63**, 104510 (2001).
10. I.I. Mazin, A.A. Golubov, B. Nadgorny, J. Appl. Phys. **89** 7576 (2001).
11. S. Kashiwaya, Y. Tanaka, N. Yoshida, M.R. Beasley, Phys. Rev. B **60**, 3572 (1999).
12. A.A. Golubov, Physica C (Amsterdam) **326–327**, 46 (1999).

13. K. Kikuchi, H. Imamura, S. Takanashi, S. Maekawa, *Phys. Rev. B* 65, 20508 (2001).
14. M.S. Osofsky, R.J. Soulen, B.E. Nadgorny et al., *Mat. Scien. Eng.* 84, 49 (2001).
15. B. Nadgorny, I. Mazin, M. Osofsky et al., *Phys. Rev. B* 63, 184433 (2001).
16. Y. Ji, C.L. Chien, Y. Tomioka, Y. Tokura, *Phys. Rev. B* 66, 012410 (2002).
17. C.H. Kant, O. Kurnosikov, A.T. Filip et al., *Phys. Rev. B* 66, 212403 (2002).
18. B. Nadgorny, M.S. Osofsky, D.J. Singh et al., *Appl. Phys. Lett.* 82, 427 (2003).
19. P. Raychaudhuri, A.P. Mackenzie, J.W. Reiner, M.R. Beasley, *Phys. Rev. B* 67, 020411 (2003).
20. N. Auth, G. Jakob, T. Block, C. Felser, *Phys. Rev. B* 68, 024403 (2003).
21. I. Baladie and A.I. Buzdin, *Phys. Rev.* 64, 224514 (2001).
22. F.S. Bergeret, A.F. Volkov, K.B. Efetov, *Phys. Rev.* 65, 134505 (2002).
23. B.P. Vodopyanov and L.R. Tagirov, *Physica B* 284-288, 509 (2000).
24. B.P. Vodopyanov and L.R. Tagirov, *Pisma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 77, 153 (2003) [*JETP Letters* 77, 126 (2003)].
25. B.P. Vodopyanov and L.R. Tagirov, *Pisma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 78, 1043 (2003) [*JETP Letters* 78, 555 (2003)].
26. A.I. Larkin and Yu.N. Ovchinnikov, *J. Low Temp. Phys.* 10, 401 (1973).
27. A.V. Zaitsev, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 86, 1742 (1984) [*Sov. Phys. - JETP* 59, 1015 (1984)].
28. L.R. Tagirov, B.P. Vodopyanov, K.B. Efetov, *Phys. Rev. B* 65, 214419 (2002).
29. N. García, M. Muñoz, Y.-W. Zhao, *Phys. Rev. Lett.* 82, 2923 (1999); G. Tataara, Y.-W. Zhao, M. Muñoz, N. García, *Phys. Rev. Lett.* 83, 2030 (1999).
30. Z. Radovic, M. Ledvij, L. Dobrosavljević-Grujić et al., *Phys. Rev. B* 44, 759 (1991).
31. L.R. Tagirov, *Phys. Rev. Lett.* 83, 2058 (1999).
32. V.V. Ryazanov, V.A. Oboznov, A.V. Veretennikov, A.Yu. Rusanov, *Phys. Rev.* 65, 020501(R) (2001).
33. A.I. Larkin and Yu.N. Ovchinnikov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 47, 1136 (1964) [*Sov. Phys. JETP* 20, 762 (1965)].
34. P. Fulde and R. Ferrell, *Phys. Rev.* 135A, 1550 (1964).
35. J.S. Jiang, D. Davidović, D.H. Reich, C.L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* 74, 314 (1995).
36. Th. Mühge, N.N. Garifyanov, Yu.V. Goryunov, G.G. Khaliullin, L.R. Tagirov, K. Westerholt, I.A. Garifullin, H. Zabel, *Phys. Rev. Lett.* 77, 1857 (1996).
37. T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, X. Grison, *Phys. Rev. Lett.* 86, 304 (2001).
38. V.V. Ryazanov, V.A. Oboznov, A.Yu. Rusanov et al., *Phys. Rev. Lett.* 86, 2427 (2001).
39. T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur et al., *Phys. Rev. Lett.* 89, 137007 (2002).
40. Y. Blum, A. Tsukernik, M. Karpovski, A. Palevski, *Phys. Rev. Lett.* 89, 187004 (2002).

Theory of superconductor - strong ferromagnet contacts

41. H. Sellier, C. Baraduc, F. Lefloch, R. Calemczuk, Phys. Rev. B 68, 054531 (2003).
42. L.R. Tagirov, Physica C 307, 145 (1998).
43. M.Yu. Kupriyanov and V.F. Likhichev, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 94, 139 (1988) [Sov. Phys. JETP 67, 1163 (1988)].
44. K.D. Usadel, Phys. Rev. Lett. 25, 507 (1970).
45. Z. Radović, L. Dobrosavljević-Grujić, A.I. Buzdin, J.R. Clem, Phys. Rev. B 38, 2388 (1988).
46. L.R. Tagirov, I.A. Garifullin, N.N. Garif'yanov, S.Ya. Khlebnikov, D.A. Tikhonov, K. Westerholt, H. Zabel, Journ. Magn. Magn. Mater. 240, 577 (2002).
47. I.A. Garifullin, D.A. Tikhonov, N.N. Garif'yanov, L. Lazar, Yu.V. Goryunov, S.Ya. Khlebnikov, L.R. Tagirov, K. Westerholt, H. Zabel, Phys. Rev. B 66, 020505(R) (2002).
48. J. Aarts, J.M.E. Geers, E. Brück et al., Phys. Rev. B 56, 2779 (1997).
49. L. Lazar, K. Westerholt, H. Zabel, L.R. Tagirov, Yu.V. Goryunov, N.N. Garif'yanov, I.A. Garifullin, Phys. Rev. B 61, 3711 (2000).

ON THE SOUND PROPAGATION IN SILICA AEROGELS FILLED IN BY NORMAL AND SUPERFLUID HELIUM

D.A.Tayurskii^{1,2)}, K.Matsumoto²⁾

¹⁾ *Kazan State University, 420008 Kazan, Russia*

²⁾ *Kanazawa University, Kanazawa, 920-1192, Japan*

Earlier obtained experimental data concerning sound propagation in silica aerogels filled in by liquid ^4He are theoretically analyzed for normal as well as superfluid phase. The simple phenomenological model is proposed for normal phase. The data for superfluid phase are described in a rather good manner by the hydrodynamic theory with taking into account the clamping of normal component by silica strands. It is shown also that at temperatures below 1 K one needs a new hydrodynamic theory in which momentum transfer between aerogel and phonons in liquid helium should be taken into account

Introduction

Porous media filled with fluid have been intensively studied experimentally and theoretically because of their physical and technological importance. The effect of disordered pore structures on the properties of the fluid can be examined in these systems. There has been considerable interest in the behavior of superfluid ^4He in the presence of a random disorder induced by highly open porous media. Recent experiments on the superfluid transition of ^4He contained in porous media such as Aerogel, Xerogel and Vycor glass have revealed that the superfluid transition differs from that of bulk ^4He [1,2]. The superfluid transition of ^4He in aerogel has been observed to be sharp [1,2], and has suggested a genuine phase transition. The transition temperature in aerogel T_c has been suppressed with decreasing aerogel porosity.

Acoustic experiments are important to understand porous media filled with fluid. Use of liquid ^4He offers unique advantages due to the existence of the superfluid phase with more than one sound mode. For the bulk fluid, there are first sound in which the two fluid components move together and propagates as a compressional wave and second sound in which the two fluid components move in opposite direction and propagates as a temperature wave [3]. In the porous media where the normal component is clamped by its viscosity and only the superfluid component can move, the fourth sound propagates and can be used to determine the superfluid fraction.

The high-porosity aerogels are so soft that the aerogel matrix clamped with the normal fluid is caused to move by the pressure and temperature gradients unlike other porous media. This results in sound modes intermediate between first and fourth sound [4] and second-like mode [5]. McKenna et al. [5] calculated longitudinal sound velocity for the two modes using the modified two fluid hydrodynamic equations in

order to take aerogel motion into consideration. They also observed the propagation of both the fast (intermediate between first and fourth sound) and the slow (second-like sound) modes in ^4He in aerogel from 1.1 K to T_c . They found agreement of the model with the observed sound velocity within the experimental temperature range.

Longitudinal and transverse ultrasound velocities have been measured in ^4He filled Vycor glass [6]. Warner and Beamish [7] have studied transverse sound (4 to 31 MHz) velocity and attenuation in alumina (Al_2O_3) ceramics with porosity changed from 44 to 92 %. They argued that the experimental results in both the low and high frequency regimes for normal and superfluid phases can be quantitatively elucidated by the Biot model [8-11]. The alumina samples were made by differently (slip-casting, sinter and sol-gel process) and porosity changed from 44% to 92%. They could make measurement in both the low and high frequency regimes by changing the ultrasound frequency, temperature from normal to superfluid phase and using ceramics with various porosities. They argued that the Biot model [8-11] could quantitatively elucidate the velocity and attenuation in all cases.

In [12] we have observed sound signal of 10 MHz longitudinal ultrasound with three different porosity aerogels from 0.5 K to 4.2 K, and measured the sound velocity and attenuation in order to study sound propagation in liquid ^4He filled aerogel system both in the normal and superfluid phase. The viscous penetration depth of liquid ^4He at 10 MHz is estimated to be longer than the typical SiO_2 strand distance. Then, the normal fluid in these systems is expected to be completely locked to aerogel matrix by viscosity. The sound velocity of aerogel largely depends on the porosity so that we can obtain an aerogel whose sound velocity is larger or smaller than that of bulk fluid. It is

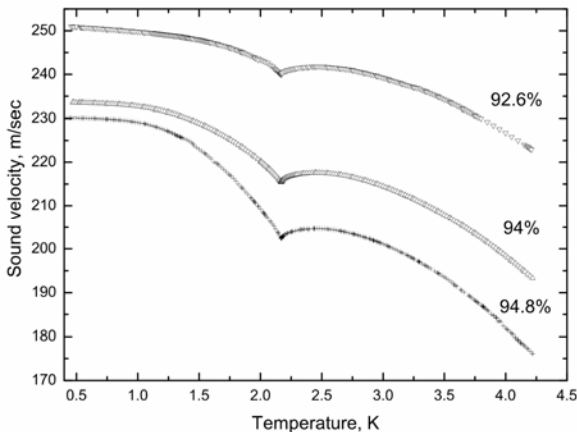


Fig. 1. Experimentally measured in [12] longitudinal ultrasound velocities in silica aerogels with various porosities filled in by liquid ^4He

interesting to see what happens if the relation of sound velocities between aerogel and fluid is counterchanged. For reader's convenience the obtained in [12] experimental results are shown in Fig. 1. The present paper is devoted to the theoretical discussion obtained in [12] experimental results and to the comparison with the existing theoretical approaches to sound propagation in porous media filled in liquid ^4He .

Normal phase

The temperature dependence of the sound velocity is similar to that of bulk for every aerogel (see Fig. 2, where experimental data as well as data for bulk liquid ^4He and the obtained aerogel sound velocities are shown, see discussion below). The absolute value greatly depends on the aerogel porosity. In ordinary porous media, the sound velocity is modified by tortuosity and the acoustic index n decreases with increasing porosity. The absolute value varies in opposition to the porosity dependence of the acoustic index. Then, tortuosity cannot explain this behavior. The similarity of the temperature variation brings scaled behavior to mind. The scaled temperature variations in the normal phase for each aerogel and also bulk liquid coincide with each other as shown in Fig. 3. This means the temperature variation is determined mainly by bulk liquid.

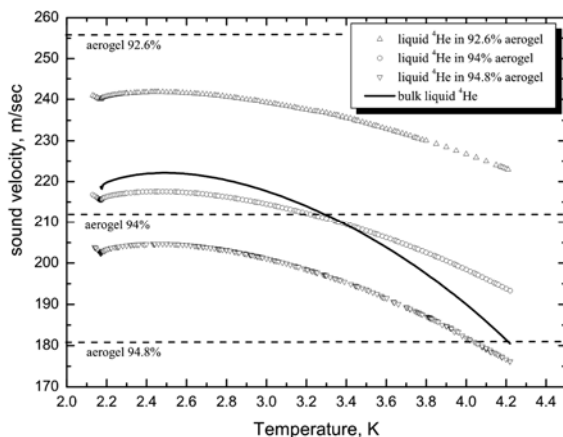


Fig. 2. The temperature dependence of the sound velocity in different aerogels filled in by liquid ^4He in normal phase. The similar dependence for bulk liquid ^4He is shown also as well as sound velocities in aerogels obtained from these experimental results (see text for details)

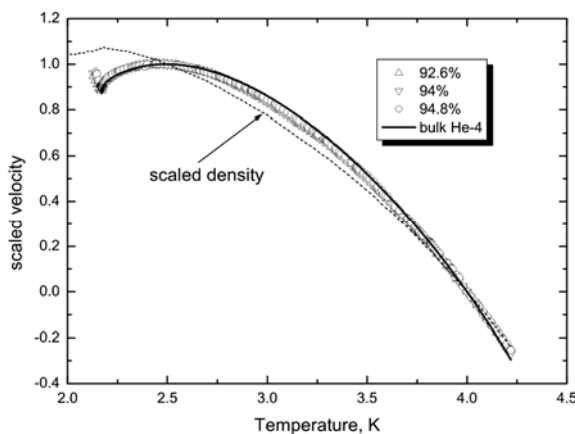


Fig. 3. The scaled temperature dependencies of sound velocities in aerogels filled in liquid ^4He and in bulk liquid ^4He . Also the scaled density of liquid ^4He is shown

It is useful to compare our data with the longitudinal sound velocity in ^4He filled Vycor [6]. In the normal phase, the sound velocity in Vycor system was almost constant, reflecting the constant sound velocity of Vycor glass. Contrary to aerogel case, Vycor glass determined the sound velocity of the composite system. In the normal phase, we can compare the sound propagation in aerogel with other porous media, which is usually explained by Biot's theory [8-11].

In a series of papers [8-11], Biot proposed a phenomenological theory of acoustic propagation in porous, fluid filled, macroscopically homogeneous and isotropic media. The parameters of that theory are the tortuosity α , the porosity ϕ (fluid volume fraction), the density of liquid ρ_f and solid ρ_{sol} , the bulk modulus of fluid K_f , the bulk modulus of solid K_s , the bulk modulus and the shear modulus of the skeletal frame K_b and N . At frequencies high enough that the viscous skin depth is much smaller than the pore size Biot argued that there are two (fast and slow) longitudinal modes in the composite system:

$$v_{fast,slow}^2 = \frac{1}{2(\rho_{11}\rho_{22} - \rho_{12}^2)} \left[P\rho_{22} + R\rho_{11} - 2\rho_{12}Q \pm \sqrt{(P\rho_{22} + R\rho_{11} - 2\rho_{12}Q)^2 - 4(\rho_{11}\rho_{22} - \rho_{12}^2)(PR - Q^2)} \right] \quad (1)$$

where coefficients P, Q, R can be related to above parameters:

$$P = \frac{(1-\phi)[1-\phi-K_b/K_s]K_s + \phi(K_s/K_f)K_b}{1-\phi-K_b/K_f + \phi(K_s/K_f)} + \frac{4}{3}N \quad (2)$$

$$Q = \frac{[1-\phi-K_b/K_s]\phi K_s}{1-\phi-K_b/K_s + \phi K_s/K_f}, \quad (3)$$

$$R = \frac{\phi^2 K_s}{1-\phi-K_b/K_s + \phi K_s/K_f}, \quad (4)$$

and the density terms are:

$$\rho_{11} + \rho_{12} = (1-\phi)\rho_{sol}, \quad (5)$$

$$\rho_{22} + \rho_{12} = \phi\rho_f, \quad (6)$$

$$\rho_{12} = (1-\alpha)\phi\rho_f. \quad (7)$$

In [13] Johnson applied the Biot's theory for the superfluid ^4He in pores below 1.1 K when the normal component can be neglected. In [14,15] this theory has been generalized in the case of superfluid-saturated porous media, when all damping processes are neglected.

In the low frequency limit the expression for fast longitudinal sound velocity is given by

$$v_l^2 = \frac{(K_b + 4N/3) + (1/\phi)(1 - K_b/K_s)^2 K_f}{\rho_{scl} + \phi\rho_f} \quad (8)$$

(ρ_{scl} is the density of solid skeletal frame, below this value will be changed by the density of aerogel) and the slow wave doesn't propagate. In the case of aerogel the bulk modulus of SiO_2 is much greater than the modulus of aerogel $K_s \gg K_b$, and the expression (8) can be simplified.

To explain the data obtained in [12] for the normal phase we can apply the Biot's theory in low frequency limit since the viscous penetration depth is larger than the mean separation of SiO_2 . So the mechanical properties of aerogel and the complex system can be evaluated by fitting formula (8) to the experimental data for every aerogel. But we should mention here, that the structure of silica aerogel is still under studying and in contrast to usual solids there is no simple relationship between the bulk modulus and the shear modulus. Hence the mentioned fitting procedure includes so many parameters in order to get aerogel sound velocity. That is why we propose some phenomenological model for sound propagation in the normal phase for the composite system in order to estimate the sound velocity in the aerogel. Actually there are three "channels" for the sound propagation in the system under consideration and they work in parallel way. The first channel is determined only by the elastic properties of liquid ^4He and corresponds to the case when the sound waves propagate only in the liquid confined between SiO_2 strands. The second channel corresponds to sound propagation through the interconnecting net of SiO_2 strands and is determined by the elastic properties of aerogel. Finally the third channel can be represented as the "mixed" channel when there are continuous transformations of the sound waves from waves in liquid ^4He to the waves in SiO_2 strands and back and this channel is determined by the elastic properties of liquid ^4He as well as of bulk SiO_2 . Keeping mind the analogy with the consequent series of spring the bulk modulus for this "mixed" channel can be write down as:

$$K_{mix} = \frac{\phi K_{\text{He}} \cdot K_{\text{SiO}_2}}{\phi K_{\text{He}} + K_{\text{SiO}_2}}, \quad (9)$$

where K_{He} and K_{SiO_2} stand for bulk modulus of liquid ^4He and silica strands. We note here that usual relationship between bulk modulus K and sound velocity u for an elastic media with density ρ

$$K = \rho u^2 \quad (10)$$

On the sound propagation in silica aerogels filled in by normal and superfluid helium

and much more higher values of sound velocity and density of silica in comparison with liquid ^4He give us the following simplification for K_{mix} :

$$K_{\text{mix}} = \frac{\phi \rho_{\text{He}} C_{\text{He}}^2 \cdot \rho_{\text{SiO}_2} C_{\text{SiO}_2}^2}{\phi \rho_{\text{He}} C_{\text{He}}^2 + \rho_{\text{SiO}_2} C_{\text{SiO}_2}^2} \approx \rho_{\text{He}} C_{\text{He}}^2, \quad (11)$$

The relative weight of the third channel α with respect to the relative weight of the first and the second channel can be considered as the fitting parameter and might depend on temperature. The temperature dependence of this parameter follows from the temperature dependence of the liquid ^4He density (the “effectiveness” of the sound transformation on the boundary liquid ^4He - SiO_2 surface is determined by the densities difference). The bulk modulus of the composite medium can be calculated with the bulk modulus of the fluid (K_{He}) and that of aerogel (K_a) and the “mixed” channel and assuming three different elastic media in parallel, resulting in

$$K = (1 - \alpha)(\phi K_{\text{He}} + K_a) + \alpha K_{\text{mix}}. \quad (12)$$

The total density is expressed using density of aerogel ρ_a , that of liquid helium ρ_{He} and ϕ as $\rho_a + \phi \rho_{\text{He}}$. Then, the sound velocity, u is expressed as

$$u^2 = \frac{\rho_{\text{He}} u_{\text{He}}^2 (\phi + \alpha(1 - \phi)) + \rho_a u_a^2 (1 - \alpha)}{\phi \rho_{\text{He}} + \rho_a}. \quad (13)$$

Note that this equation looks a rather similar to (8). In the simplified form (at $\alpha = 0$) the given equation has been used in [12] to obtain aerogel sound velocity u_a from the experimental data under assumption that the aerogel sound velocities are constant with temperature, considering other experiments [16,17]. The obtained aerogel sound velocities for three aerogels listed below are consistent with the density dependence of aerogel sound velocity obtained by Gross [18]:

Porosity	u_a , m/sec
92.6%	256
94%	212
94.8%	182

We will use these values to analyze the sound mode in the superfluid phase.

Strictly speaking there are two fitting parameters in Eq. (13): u_a and $\alpha(T)$. The simplified case ($\alpha = 0$) can be considered as the first approximation. After that as far as the temperature dependence of u is determined mainly by liquid helium (see Fig. 3) we can neglect by temperature dependence of $\alpha(T)$ and get the main term in the expansion of $\alpha(T)$ with respect to T . So, in principle, the values aerogel sound velocity and parameter α can be found with the desired accuracy.

Superfluid phase

The propagation of sound in superfluid phase is usually described by linearizing the two-fluid hydrodynamic equations. Following Atkins [19] we can write down the continuity equation:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{j} = -\nabla \cdot (\rho_n \mathbf{v}_n + \rho_s \mathbf{v}_s) \quad (14)$$

and the equation for the entropy conservation

$$\frac{\partial(\rho\sigma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho\sigma \mathbf{v}_n) = 0. \quad (15)$$

In equation of motion we omit terms quadratic in the velocities

$$\rho_n \frac{\partial \mathbf{v}_n}{\partial t} = -\frac{\rho_n}{\rho} \nabla p - \rho_s \sigma \nabla T \quad (16)$$

$$\rho_s \frac{\partial \mathbf{v}_s}{\partial t} = -\frac{\rho_s}{\rho} \nabla p + \rho_s \sigma \nabla T. \quad (17)$$

Adding last two equations together we have

$$\frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t} = -\nabla p, \quad (18)$$

where further second quadratic terms such as $\mathbf{v}_s (\partial \rho_s / \partial t)$ have been ignored. In combination, (14) and (18) yield the first linearizing hydrodynamic equation

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial t^2} = \Delta p. \quad (19a)$$

To obtain the second one can eliminate ∇p between (17) and (18)

$$\rho_n \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{v}_n - \mathbf{v}_s) = -\rho \sigma \nabla T \quad (20)$$

which confirms that a temperature gradient produces relative motion between two fluids. Finally combining (14), (15) and (20) gives the second of the two equations we need:

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial t^2} = \frac{\rho_s}{\rho_n} \sigma^2 \Delta T. \quad (19b)$$

After substituting $p = p_0 + p'$ and $T = T_0 + T'$ (where p_0, T_0 are the equilibrium values and p', T' are the perturbations due to sound wave) we get

$$\frac{\partial \rho}{\partial p} \frac{\partial^2 p'}{\partial t^2} - \Delta p' + \frac{\partial \rho}{\partial T} \frac{\partial^2 T'}{\partial t^2} = 0 \quad (21a)$$

$$\frac{\partial \sigma}{\partial p} \frac{\partial^2 p'}{\partial t^2} + \frac{\partial \sigma}{\partial T} \frac{\partial^2 T'}{\partial t^2} - \frac{\sigma^2 \rho_s}{\rho_n} \Delta T' = 0. \quad (21b)$$

If we look for plane-wave solutions of these equations, p' and T' are proportional to $\exp(-i\omega(t - x/u))$, where u is the velocity in the x -direction. So we can rewrite equations (21a) and (21b) as:

$$\left(\frac{\partial \rho}{\partial p} u^2 - 1 \right) p' + \frac{\partial \rho}{\partial T} u^2 T' = 0 \quad (22a)$$

$$\frac{\partial \sigma}{\partial p} u^2 p' + \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} u^2 - \frac{\sigma^2 \rho_s}{\rho_n} \right) T' = 0. \quad (22b)$$

Neglecting the anomalous small for superfluid helium thermal expansion coefficient $\partial \rho / \partial T$ we obtain two velocities for sound propagation from the secular equation of system (22):

$$u_1 = \sqrt{\left(\frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_\sigma} \quad (\text{the first sound}), \quad (23)$$

$$u_2 = \sqrt{\frac{\sigma^2 \rho_s}{\rho_n \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} \right)}} \quad (\text{the second sound}). \quad (24)$$

It is known that for liquid ^4He inside a porous media where the normal component is immobilized and only the superfluid is in motion the so-called fourth sound can be observed [20] and its velocity is given by:

$$u_4^2 = \frac{\rho_s}{\rho} u_1^2 + \frac{\rho_n}{\rho} u_2^2. \quad (25)$$

It is assumed here that the porous media is absolute rigid and doesn't take place in the oscillate motion of liquid. The silica aerogel represents an "easy carried along" media, so the normal component locked by its viscosity silica strands and aerogel matrix move together with a velocity $\mathbf{v}_n$. The modified hydrodynamic equations were introduced for this case by McKenna *et al.* [5] and were investigated partially in [21]. Because of numerous mathematical errors in the last paper we solve here the system of hydrodynamic equations for the sound propagation in silica aerogel filled in by liquid ^4He . The starting hydrodynamic equations are:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_n \mathbf{v}_n + \rho_s \mathbf{v}_s) = 0, \quad (26)$$

$$\frac{\partial (\rho \sigma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \sigma \mathbf{v}_n) = 0, \quad (27)$$

$$\rho_s \frac{\partial \mathbf{v}_s}{\partial t} = -\frac{\rho_s}{\rho} \nabla p + \rho_s \sigma \nabla T, \quad (28)$$

$$\rho_{na} \frac{\partial \mathbf{v}_n}{\partial t} = -\frac{\rho_n}{\rho} \nabla p - \nabla p_a - \rho_s \sigma \nabla T, \quad (29)$$

$$\frac{\partial \rho_a}{\partial t} + \nabla (\rho_a \mathbf{v}_n) = 0. \quad (30)$$

These differ from the bulk superfluid ^4He equations (14)-(17) by the replacement $\rho_n \rightarrow \rho_n + \rho_a = \rho_{na}$ on the left-hand side of Eq. (29) and the additional restoring force p_a due to the aerogel. Performing the same calculations as above and introducing the perturbation p_a' due to sound plane-wave we obtain finally:

$$p' \left[-\frac{u^2}{u_1^2} + \frac{\rho_s \rho_{na} + \rho_n^2}{\rho \rho_{na}} \right] + T' \left[-u^2 \frac{\partial \rho}{\partial T} - \frac{\sigma \rho_s \rho_a}{\rho_{na}} \right] + p_a' \frac{\rho_n}{\rho_{na}} = 0, \quad (31a)$$

$$p' \left[-u^2 \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial T} - \frac{\sigma \rho_s \rho_a}{\rho \rho_{na}} \right] + T' \left[-\frac{u^2}{u_2^2} \frac{\sigma^2 \rho \rho_s}{\rho_n} + \frac{\sigma^2 \rho_s (\rho + \rho_a)}{\rho_{na}} \right] + p_a' \frac{\sigma \rho_s}{\rho_{na}} = 0, \quad (31b)$$

$$p' \frac{\rho_n \rho_a}{\rho \rho_{na}} + T' \frac{\sigma \rho_s \rho_a}{\rho_{na}} + p_a' \left[\frac{\rho_a}{\rho_{na}} - \frac{u^2}{u_a^2} \right] = 0. \quad (31c)$$

By neglecting $\partial \rho / \partial t$ the secular equation for the system (31) is reduced to the equation from [5]. Excluding p_a' from (31c) we arrive to two-equation system similar to the obtained in [21] from which the sound conversion phenomena in superfluid ^4He in aerogel can be investigated. The numerical calculations of (31) give the sound velocity of the two modes – the fast and the slow ones (solid and dotted lines in Fig. 4-6, respectively). The temperature dependence between about

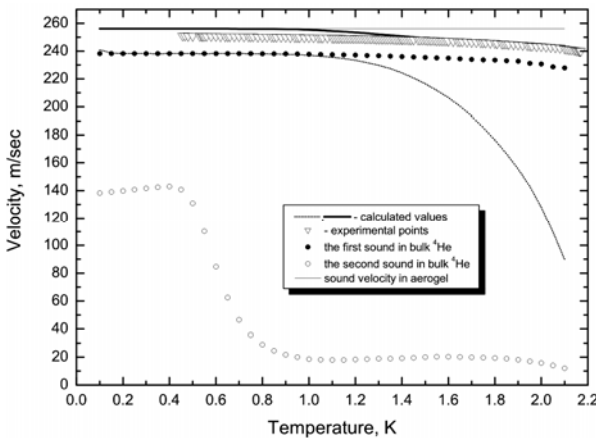


Fig. 4. The calculated sound velocities for two modes from equations (31) for 92.6% aerogel filled in by superfluid ^4He and experimental points from The temperatures dependencies of the first and second sound for bulk ^4He are shown also

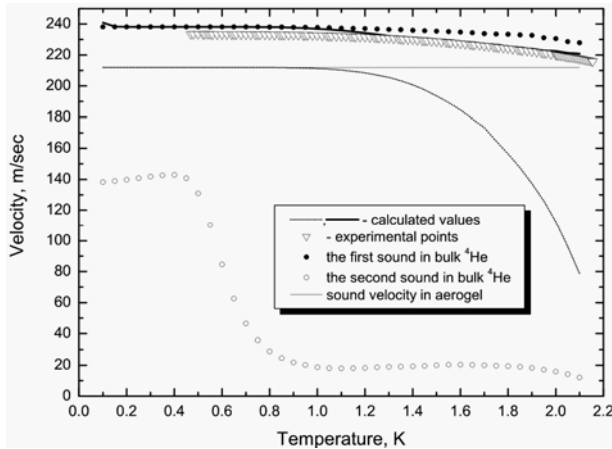


Fig. 5. The same as in Fig.4, for 94% aerogel

1 K and T_c is elucidated from the calculation using the aerogel sound velocity estimated from the analysis in the normal phase. The sound velocities of these modes converge to that of bulk helium and aerogel, since there is neither normal component nor viscous coupling in between at low temperatures. The slow mode velocity goes to zero at T_c . It is clearly shown that the experimentally observed sound mode in [12] corresponds to the fast mode. They agree well between 1 K and T_c for all aerogels. However, the discrepancy becomes significant below 1 K. The calculated fast mode converged to the bulk liquid sound velocity in the case of 94.0 and 94.8 % aerogel since aerogel sound velocity is slower than liquid. The sound velocity of the fast mode for 92.6 % aerogel becomes higher than bulk liquid at low temperatures which results from the higher sound velocity of aerogel than bulk liquid. On the other hand, the experimentally observed sound velocities at low

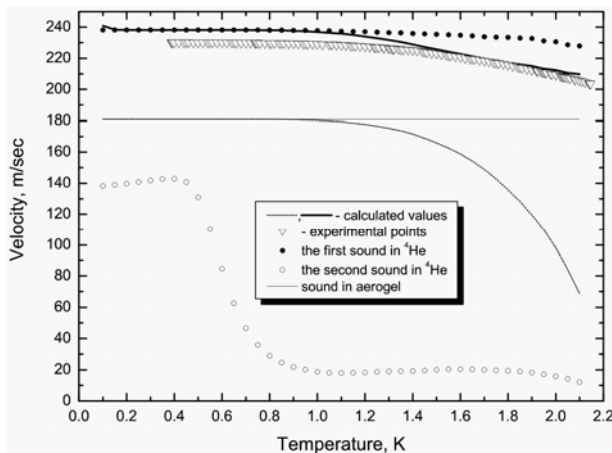


Fig. 6. The same as in Fig.4, for 94.8% aerogel

temperature are lower than the calculated values. The porosity dependence of the velocity can not be determined by the tortuosity as in the case of normal phase.

Then, the coupling between liquid and aerogel should be considered apart from viscosity of the normal fluid. We compared the mean free path of phonon and roton and that determined geometrically by aerogel strands. The geometrically limited mean free path becomes shorter than that by phonon and roton below 1 K. Acoustic phonons are thought to be scattered by aerogel strands and give rise to the momentum transfer between aerogel and phonons. This means that the simple hydrodynamic theory is not applicable to this temperature range because there is no mechanism of momentum transfer due to no viscous fluid. A new theory is necessary in which momentum transfer between aerogel and phonon should be taken into account as in the case of liquid ^3He -aerogel system [22].

Conclusions

In conclusion, we have studied theoretically the low temperature acoustic properties of liquid ^4He filled aerogel system for various porosity aerogels and interpreted the observed in [12] compressional wave in both the normal and the superfluid phase using 10 MHz ultrasound. It has been found that sound velocity is strongly influenced by aerogel. The temperature dependence of the sound velocity is similar to that of bulk liquid but the absolute value is varied by aerogel. The scaling behavior has been shown in the normal phase. The simple phenomenological model is proposed for the normal phase.

In the superfluid phase, the three sound modes are calculated from the hydrodynamic model and the observed sound mode has been shown to correspond to the fast mode. The temperature variation between 1 K and T_c is explained by this model.

Acknowledgement

This work was partially support by the grants from “Universities of Russia”. The authors would like to express their appreciation to Prof. H. Suzuki and Dr. S. Abe for numerous useful discussions.

References

1. G.K. Wong, P.A. Crowell, H.A. Cho, J.D. Reppy, *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 2410 (1990).
2. J. Yoon, D.Sergatskov, J. Ma, N. Mulders, M.H.W. Chan, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 1461 (1998).
3. I.M. Khalatnikov, *An Introduction to the Theory of Superfluidity*, W.A. Benjamin, NY, 1965.
4. M.J. McKenna, T.M. Slawecki, and J.D. Maynard, *Physica B*, **165&166**, 581 (1990).

5. M.J. McKenna, T.M. Slaweck, and J.D. Maynard, *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 1878 (1991).
6. J.R. Beamish, A. Hikata and C. Elbaum, *Phys. Rev. B*, **27**, 5848 (1983).
7. K. Warner and J.R. Beamish, *Phys. Rev. B*, **50**, 15896 (1994).
8. M.A. Biot, *J. Acoust. Soc. Am.*, **28**, 168 (1956), **28**, 179 (1956).
9. M.A. Biot, *J. Appl. Phys.*, **33**, 1482 (1962).
10. M.A. Biot, *J. Acoust. Soc. Am.*, **34**, 1254 (1962).
11. M.A. Biot and D.G. Willis, *J. Appl. Mech.*, **24**, 594 (1957).
12. K. Matsumoto, Y. Matsuyama, D.A. Tayurskii, and K. Tajiri, *cond-mat/0312485*, submitted to *Phys. Rev. B*.
13. D.L. Johnson, *Appl. Phys. Lett.*, **37**, 1065 (1980).
14. T. Buishvili, Sh. Kekutia, O. Tkeshelashvili, and L. Tkeshelashvili, *Phys. Lett. A*, **300**, 672 (2002).
15. Sh. Kekutia, N.D. Chkhaidze, *Low Temp Phys.*, **28**, 795 (2002).
16. Y. Xie and J.R. Beamish, *Phys. Rev. B*, **57**, 3406 (1998).
17. D.R. Daughton, J. MacDonald and N. Mulders, *Physica B*, **329-333**, 1233 (2003).
18. J. Gross, J. Fricke, and L.W. Nrubesh, *J. Acoust. Soc. Am.*, **91**, 2004 (1992).
19. K.R. Atkins, *Liquid Helium*, London: Cambridge University Press, 1959.
20. K.R. Atkins *Phys.Rev.*, **113**, 962 (1959).
21. P. Brusov, J.M. Parpia, P. Brusov, and G. Laves, *Phys.Rev.B*, **63**, 140507 (2001).
22. T. Ichikawa, M. Yamamoto, S. Higashitani and K. Nagai, *J. Phys. Soc. Japan*, **70**, 3483 (2001).

DIFFERENT REGIMES OF STRIPE FLUCTUATIONS IN THE SUPERCONDUCTING CUPRATES

G.B. Teitel'baum

Institute for Technical Physics of the RAS, 420029 Kazan, Russia

The complementary NMR and ESR studies of the frustrated phase separation in different superconducting cuprates are reported. We specially address the temperature dependence of the magnetic fluctuations and discuss their link with the observed superconducting state. It is argued that according to the phase diagram obtained for the lanthanum cuprates the superconducting phase coexists with the developed antiferromagnetic correlations. The observed picture is strongly dependent on the hole doping. In the vicinity of 1/8 doping such a coexistence may be realized in a form of dynamic stripes – the corresponding enhancement of the spin-stiffness reveals the plane character of the spin (and charge) inhomogeneities. Depending on whether these inhomogeneities are pinned or not, one has to distinguish the static and dynamical regimes of stripe fluctuations. With a help of our spin stiffness estimations, the upper threshold values of this quantity critical for the superconducting state were determined. The NMR analysis of the stripe phase local properties made it possible to estimate the local magnetic moment corresponding to antiferromagnetic domains as well as the charge of the domain walls.

I. Introduction

Soon after the discovery of high- T_c superconductivity in cuprates by Bednorz and Müller it was found that these materials reveal the intrinsic tendency to the phase separation [1]. One of the possible manifestations of this feature upon doping of the parent antiferromagnetic (AF) phase of a high- T_c superconductor by holes is the segregation of charges to the periodical domain walls (stripes) separating the antiphase AF domains [2,3]. The first evidence for such stripe phase has been provided by neutron studies of the low temperature tetragonal (LTT) phase of Nd-doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ [3]. Later the stripe correlations were observed in other cuprates [4-6]. But in spite of the hot interest to the problem, surprisingly little is known about the local properties of the stripe structure as well as about their relevance to the origin of the high- T_c mechanism. One of the key problems here is the elucidation of the possible coexistence of stripe fluctuations with the superconductivity. Investigations of this problem with different experimental methods give evidence that the observed picture is highly dependent on the characteristic frequency scale of the method. This indicates that relationship of the superconductivity and the stripe fluctuations is strongly frequency dependent.

In the present paper we overview the complementary NMR and ESR studies of different frequency regimes of the stripe fluctuations in the lanthanum cuprates. The essential feature of our approach is that it is connected with the tuning of the fluctuation's frequencies of the studied materials by various doping. The possibility of such a tuning is related with the different ways to affect the structure: *i*) the strontium doping reduces the magnitude of the CuO₆ octahedra tilts and may induce the transition between the LTO (Low Temperature Orthorhombic) and HTT (High Temperature Tetragonal) phases; *ii*) the doping by the rare earth ions controls the direction of the CuO₆ octahedra tilts and may induce the transition between the LTO and LTT (Low Temperature Tetragonal). The different octahedra tilts result in different buckling of CuO₂ planes thus providing the different pinning of the stripe fluctuations.

II. The stripes fluctuations in LTT phase

1. This part of the paper is devoted to the NQR studies of cuprates with LTT structure, which is helpful for pinning of the stripe phase. This structure was induced by doping with non-magnetic Eu rare-earth ions instead of magnetic Nd ones used in [3] (the ordering of Nd moments causes fast Cu nuclear relaxation hindering the observation of Cu NQR). We expect that in the stripe structure the different Cu sites will be inequivalent with respect to the NQR, providing information on the local properties at given points of the structure. The serious difficulties of the present research are due to the slowing of the charge fluctuations down to MHz frequency range which wipes out a large part of the nuclei from the resonance [7,8]. Fortunately the reappearance of the signal in the slow fluctuations limit at low temperatures enables us [9] to take the advantages of the extreme sensitivity of Cu NQR to the local charge and magnetic field distribution.

2. For our experiments we have chosen fine powders La_{2-x-y}Eu_ySr_xCuO₄ with variable Sr content x and fixed Eu content $y = 0.17$. The preparation of single-phase samples was described in [10]. It was found [10] that for such Eu content the LTT phase is realized for $x > 0.07$. For Sr concentrations $x > 0.12$ the ac-susceptibility and microwave absorption measurements reveal the presence of superconductivity with $T_c = 6; 9; 14; 19; 18; 16; 13\text{K}$ for respectively $x = 0.12; 0.13; 0.15; 0.18; 0.20; 0.22; 0.24$. The superconducting fraction is small for $x \leq 0.18$ and starting from $x > 0.18$ a transition to bulk superconductivity takes place.

The NQR measurements were performed with the standard spectrometer in the range 20 - 100 MHz. By lowering the temperature down to 1.3 K, the Cu-NQR spectra at all Sr concentrations were observed [9].

Regarding their NQR properties the samples should be separated into two groups:

The first one corresponds to Sr concentrations $x \leq 0.18$. The superconducting fraction of these samples, if any, was rather small. Each of the spectra, which are very similar for $0.08 \leq x \leq 0.18$, consists of a broad line in the region from

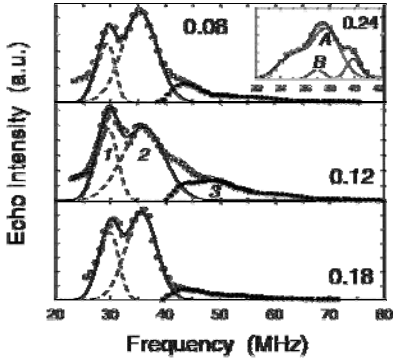


Fig. 1. Representative Cu NQR lineshapes at 1.3 K of $\text{La}_{2-x-y}\text{Eu}_y\text{S}_x\text{CuO}_4$ with $y = 0.17$. The value of x is shown for each line. All lineshapes include standard frequency corrections of ν^2 and are normalized to equal heights. The continuous line is the fit of the two-isotope contribution of sites 1 and 2. Filled circles show the contribution of the antiferromagnetic site 3. Inset: A typical signal for $x > 0.18$ decomposed into two contributions ($T = 4.2$ K)

20 MHz up to 80 MHz with an unresolved peak between 30 and 40 MHz (Fig. 1). The spectra for different x differ mainly with the integral intensity, which is peaked near $x = 0.12$ (Fig. 2a).

The second group of samples with $x > 0.18$ showing bulk superconductivity possesses completely different and much narrower NQR spectra (Inset to Fig. 1), which can also be observed at much higher temperatures. The intensity grows up with increasing x from 0.18 (Fig. 2b).

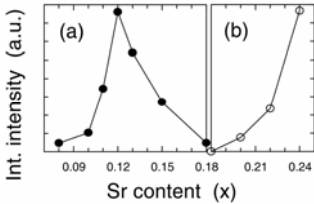


Fig. 2. The Cu NQR integrated intensity (normalized) of $\text{La}_{2-x-y}\text{Eu}_y\text{S}_x\text{CuO}_4$: for $0.08 \leq x \leq 0.18$ at 1.3 K (a); for $x \geq 0.18$ at 4.2 K (b)

3. Beginning the discussion with the $x \leq 0.18$ group, let us first consider the above-mentioned complicated peak in the lineshapes. The two Cu-isotopes Gaussian fit to these peaks reveals the existence of two independent copper sites 1 and 2 having different NQR frequencies (Fig. 3).

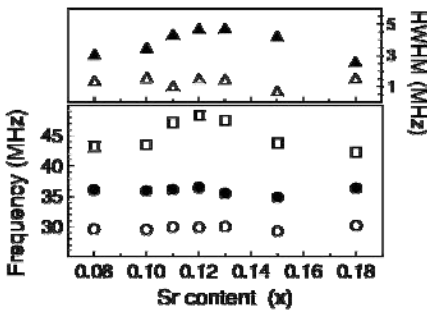


Fig. 3. The parameters of different contributions to the Cu NQR signal for $0.08 \leq x \leq 0.18$ in $\text{La}_{2-x-y}\text{Eu}_y\text{S}_x\text{CuO}_4$ ($T = 1.3$ K): ^{63}Cu NQR frequencies of sites 1 - open circles and 2 - filled circles; the corresponding half widths at half maximum (HWHM) - open and filled triangles resp.; the frequencies corresponding to the maxima of the magnetic contribution 3 are shown by squares

Different regimes of stripe fluctuations in the superconducting cuprates

To make the site assignment, note that the NQR frequency is sensitive to the local hole concentration changing between 0.5 and 0 hole per Cu atom [3]. In a linear approximation we obtain that for the given x the resonance frequency ν_Q is connected with the local hole density $n(\mathbf{r})$ via the relation $\nu_Q(n, H) = \nu_Q^0(H) + \beta n$ with the empirical constant β and $H(\mathbf{r})$ being the internal magnetic field. The first term here is the NQR frequency for the compound with zero Sr content, the second one is the positive shift due to the local increase of the effective fractional charge on Cu. This expression agrees both with the calculations in the ionic [11] as well as in the cluster [12] models (in the uniform case $n = x$).

It follows from our results (Fig. 3) that the resonance frequencies ${}^{63}\nu_Q^{(1)}(x)$ for line 1 are shifted to lower values from the reference value ${}^{63}\nu_Q(0,0) = {}^{63}\nu_Q^0$ (we use here ${}^{63}\nu_Q^0 = 31.9$ MHz estimated for La_2CuO_4 [13]). This indicates that the positive contribution to ${}^{63}\nu_Q(x,n)$ is small and that the effective fractional charge on sites 1 is near zero. The corresponding resonance frequency depends on the local internal field and has a minima for Zeeman frequencies falling in the vicinity of bare quadrupole frequency ${}^{63}\nu_Q^0$. The distribution of the resonance frequencies is enhanced at the point corresponding to the minima giving rise to a narrow line 1. In contrast, line 2 is due to the sites which exhibit a positive shift respect to ${}^{63}\nu_Q^0$. It means that these sites belong to the regions with an increased average charge (hole density) on the Cu ions. The high frequency part of the spectrum can be analyzed by subtraction of the 1 and 2 contributions from the entire signal. The resulting spectra are shown in Fig. 1. The frequencies corresponding to their maxima are plotted in Fig. 3. We assume that this line corresponds to the broadened, $1/2 \leftrightarrow -1/2$ transitions of nuclei located in sites 3 experiencing an internal magnetic field (note the broad high-frequency shoulder). The satellites are unresolved due to inhomogeneities of the internal magnetic field and of the NQR frequencies. If the orientation of the internal field with respect to the electric field gradient is identical to that observed for La_2CuO_4 [13] the frequency of this transition enables us to estimate the quadrupole shift and to determine the Larmor frequency for this Cu site to be 45.2 MHz for $x = 0.12$. It corresponds to an internal field of 40.1 kOe. Using the hyperfine constant $|A_Q| = 139 \text{ kOe}/\mu_B$ [14], we estimate the effective magnetic moment of Cu at site 3 to be equal to $0.29 \mu_B$, coinciding with the value obtained from neutron and muon experiments [4,15].

Since quantitatively similar spectra were observed for each compound of the first group we believe that they contain the same elementary "bricks" of the phase under study. Discussing the relative weight of the different contributions and extrapolating the corresponding signal intensities to $t = 0$ we find the contributions of sites 1, 2, 3 to be given by the ratio (1:6:13).

For the interpretation of our results it is important that signal 1 is not connected with any specific feature of the structure, whereas the signals 2 and 3 correspond to the extremal points of the spin and charge distributions.

The NQR frequencies for the site 2 (see Fig. 4) are almost the same for any x thus indicating that for all Sr concentrations the stripes are equally charged. The effective charge in a stripe is near 0.18 - 0.19. This is larger than the average hole concentration (x) but less than 0.5 expected for the ideal stripe picture [3]. It means that the charge is distributed over the domain wall of a finite thickness. Together with the above-mentioned intensity ratio this indicates that the real stripe picture differs from the ideal one. The changes in intensity of the NQR spectra are due to variation of the number of "bricks" for the compounds with different x , which depends on the pinning strength. Our results indicate that the stripe phase is pinned at least for the time scales shorter than 10^{-6} sec (so called quasistatic regime).

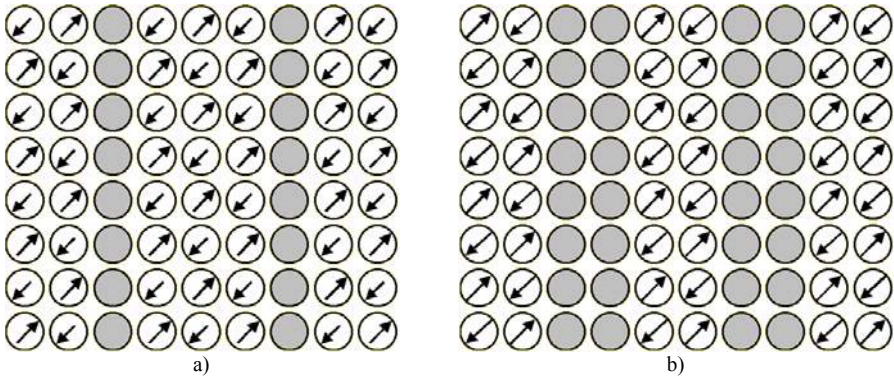


Fig. 4. The possible models of the stripe structure: **a)** charged ($n = 0.5$) stripes and three-leg spin ladders; **b)** charged ($n = 0.25$) stripes and two-leg spin ladders. The circles represent the copper ions whereas the arrows indicate the magnetic moment's orientation. The shadowed circles correspond to the nonmagnetic sites with the distributed hole density

The pinning for $0.08 \leq x \leq 0.18$ is due to the buckling of the CuO_2 plane. It is connected with the CuO_6 octahedra tilts around the [100] and [010] axis by the angle Φ , which for given Eu substitution is governed by the Sr content. It follows from Fig. 2a, that the quantity of the pinned phase, which is proportional to the NQR signal intensity, is peaked at $x = 0.12$ when according to our estimations the entire sample is in the pinned stripe phase. This indicates additional strong pinning due to the commensurability effect. Such pinning is not unique for the LTT phase (as buckling is). It is a manifestation of the plane character of the inhomogeneities of the charge and spin distributions. Together with the existence of three different Cu sites (note that site

1 corresponds to a defect) this gives an independent justification of the stripe picture. Our data are compatible with two models: *i*) the structure [3] with the charge domain wall along one Cu-O chain separated by the bare three-leg ladders (Fig. 4a). The deviation of the estimated effective charge from 0.5 may indicate that in reality the thickness of the charged stripe is larger than one lattice spacing; *ii*) the structure [16] with the charged walls consisting from two neighboring Cu-O chains separated by two-leg spin ladders (Fig. 4b). The average hole density in this model is 0.25. This is closer to the observed 0.19, but there are some problems with the relative intensity of the sites 2 and 3 and the periods of spin and charge modulations.

Upon increasing x over $x=0.18$ the tilt angle is decreasing below the critical value $\Phi_c \cong 3.6^\circ$ [17] and depinning of the stripe phase takes place (i.e. transition to the dynamical regime). Such behaviour occurs for the compounds with Sr concentration $x > 0.18$. The corresponding NQR spectrum transforms to the narrow signal at higher frequencies, which for $x = 0.24$ is shown in the inset to Fig. 1. The intensity of this line (proportional to the quantity of the unpinned stripe phase) is shown in Fig. 2b.

The analysis of this relatively narrow signal reveals only two different sites with ^{63}Cu NQR frequencies of 37.60 MHz and 39.82 MHz. Within 1% accuracy these frequencies coincide with those known at the same x for the A and B sites in the LTO superconducting phase [18] confirming that the LTT structure differs only in the directions of CuO_6 octahedra tilts. The satellite B is due to Cu having a localized hole in the nearest surrounding since, according to [12, 19], its NQR frequency has the additional positive shift $\delta\nu_0 \cong 2.5$ MHz. The observed transformation of the NQR spectra in comparison with those for $x \leq 0.18$ is due to the fast transverse motion of stripes in the depinned phase. As a result the internal magnetic field on Cu nuclei is averaged out, and the effective fractional charge is homogeneously distributed over all Cu nuclei giving usual NQR frequencies. A transition from the quasistatic to the dynamical regime of fluctuations, which is due to depinning, leads to drastic changes in the magnetic and superconducting properties.

Regarding the superconducting properties we note that the depinning point separates two different types of superconductivity. For $x \leq 0.18$ we are dealing with a weak Meissner effect, an increased London penetration length and with T_c increasing with x growing up to 0.18. Combining these facts with the absence of a narrow signal typical for the bulk superconducting phase, indicating that the impure LTO phase is absent, and with the suppression of the relaxation via magnetic moments of doped holes, one has arguments in favor of possible one-dimensional superconductivity along the charged rivers of stripes – the issue which is widely discussed [20]. For $x > 0.18$ we have bulk superconductivity with conventional London length, typical NQR signal and decreasing $T_c(x)$. Such crossover may be caused by the transverse motion of the stripes carrying superconducting currents, which gives rise to the conventional superconductivity in CuO_2 planes. Although possibly a simple coincidence, it happens when the doping x is equal to the effective charge (n) in a stripe.

III. The stripe fluctuations in the LTO phase

1. The interest to the microscopic phase separation in the superconducting $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ has received a new impetus after the recent neutron scattering experiments [21,22] in the LTO phase of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ with moderate x which reveal the presence of modulated AF order very similar to that observed in the LTT compound $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. But on a larger time scale magnetic fluctuations in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ are dynamical, especially for the superconducting state, and their relevance to the stripe structure is a matter of debate. In particular, the dynamical nature of the microscopic phase separation hinders the investigation of its properties by means of low frequency local methods such as conventional NMR.

Therefore it is of great importance to investigate the phase diagram and the properties of magnetic fluctuations in superconducting $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ and related compounds shifting the measurements to larger frequencies. This section is devoted to analysis of the Gd^{3+} EPR measurements [23,24] which are focused mainly on the investigation of the temperature and doping dependence of the low frequency magnetic fluctuations for the superconducting $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ with hole doping covering the entire superconducting region of the phase diagram.

The temperature behaviour of the multiline Gd^{3+} ESR spectrum for $T > T_c$ is qualitatively very similar to that observed for the Eu doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ compounds (with LTT symmetry) described in [24,25]: a linear dependence of ΔH on temperature which is followed by the rapid growth of the linewidth at low T (the typical temperature dependence of the ΔH for the most intense central component is shown in Fig. 5). But after cooling below 40 K the behaviour of superconducting and nonsuperconducting (Eu doped) samples becomes different: the linewidth of superconducting LSCO exhibits the downturn starting at a temperature T_m , dependent on x , whereas for other samples which are not bulk superconductors ΔH continues to grow upon further lowering temperature (see Fig. 5).

2. We address now the question – why the temperature dependences for the nonsuperconducting (LTT) and superconducting (LTO) compounds are so different at low temperatures? To find an answer we take into account that in addition to the important but temperature independent residual inhomogeneous broadening the linewidth is given by different homogeneous contributions linked to the magnetic properties of the CuO_2 planes:

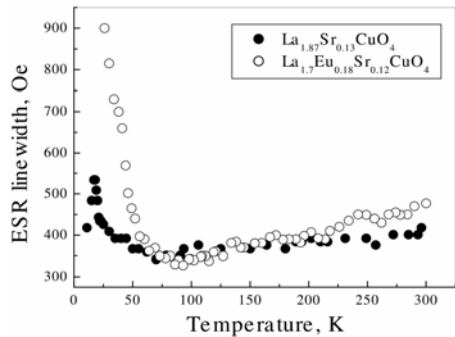


Fig. 5. The Gd^{3+} ESR linewidth temperature dependence for LTO superconducting LSCO and LTT nonsuperconducting LESCO

Different regimes of stripe fluctuations in the superconducting cuprates

I) the interaction of Gd^{3+} spins with the charge carriers, i.e. the Korringa relaxation channel. The simplest Korringa term in the linewidth is $\Delta H = a + bT$ with $b = 4\pi(JN_F)^2 P_m$ [26], where $P_m = [s(s+1) - m(m+1)]$ – is the squared matrix element of the Gd spin-state transitions, N_F is the density of states at the Fermi level, J is the coupling constant between the Gd and charge carrier spins. For the system under study it was discussed in [27]. Note, that the enhancement of the linear slope for the Eu doped compound is due to the influence of the depopulation of the first excited magnetic Eu level [25].

II) the interaction of Gd with the AF fluctuations of copper spins, giving rise to the homogeneous broadening of the Gd ESR line (a close analogue of the nuclear spin-lattice relaxation). Introducing the internal field at Gd site, H_{Gd} , and averaging over the random orientation of the local Cu moments with respect to the external magnetic field it is possible to write the corresponding contribution to the linewidth as

$$\Delta H = \frac{1}{3} (\gamma H_{\text{Gd}})^2 P_m \left[\tau + \frac{2\tau}{1 + (\omega_s \tau)^2} \right]. \quad (1)$$

Here $\tau = \tau_\infty \exp(E_a/kT)$ is the life-time of AF fluctuations, τ_∞ is its value at the infinite temperature, and E_a is the activation energy, proportional to the spin stiffness ρ_s ($E_a = 2\pi\rho_s$), ω_s is the ESR frequency.

This term describes the standard Bloembergen-Purcell-Pound (BPP) behaviour: the broadening of the EPR line upon cooling with the downturn at a certain freezing temperature T_m corresponding to $\omega_s \tau = 1$. It was observed in [23,24,27] that depending on the Sr content the linewidth behaviour transforms from the BPP-like (with the maximum at T_m) to the pure Korringa (linear) temperature dependence. Based on the observation that the relative weight of the BPP-contribution compared with the Korringa one decreases with increasing Sr doping, it was concluded [23,24] that at low x the Gd spin probes the almost magnetically correlated state and at the high x – the almost nonmagnetic metal. The corresponding phase diagram is shown in Fig. 6.

The different temperature dependences of the superconducting and nonsuperconducting samples may be explained assuming that for the superconducting samples the linewidth below T_c is governed by fluctuating fields which are transversal to the magnetic field responsible for the Zeeman splitting of the Gd spin states (the second term in Eq.(1)). Since these fluctuations are induced by Cu moments lying in the CuO_2 planes, it means that Gd ions are subjected to the constant magnetic field normal to these planes. This may indicate that the magnetic flux lines penetrating in the layered superconducting sample tend to orient normally to the basal planes where the circulating superconducting currents flow. (The difference of the T_m and T_c values observed for the samples with small x enables one to conclude that the possible distortion of ESR lineshape owing to

the non-resonant microwave absorption as the main reason for the apparent narrowing of the ESR line below T_c seems to be improbable).

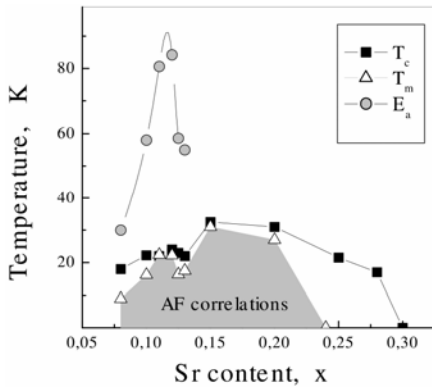


Fig. 6. The fluctuation's phase diagram of the superconducting $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. The triangles correspond to the magnetic transition temperature $T_m(x)$, squares – to the superconducting transition temperature $T_c(x)$ and the circles to the magnetic fluctuations activation energy $E_a(x)$

Since the measurements [23,24] were carried out at nonzero external field it is very important to consider the flux lattice effects. At typical ESR fields of ~ 0.3 T, which are oriented normal to the CuO_2 layers, the period of the lattice is $860 \text{ \AA}$, whereas the vortex core sizes for $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ is $20 \text{ \AA}$. As the upper critical field equals to 62 T, it is clear that in the case of ESR the vortex cores occupy only 0.5% of the CuO_2 planes. According to [28,29] the Cu spins in the vortex cores may be AF ordered. Therefore the phase diagram in Fig. 6 indicates that not only the spins in the normal vortex cores are AF correlated, but the AF correlations are spread over the distances of the order of magnetic correlation length which at low doping reaches $600 - 700 \text{ \AA}$ [29].

3. Numerical simulations of the temperature dependences of the Gd ESR linewidths for the compounds with different Sr content make it possible to estimate the values of the parameters in the expression for the linewidth: the maximal internal field H_{Gd} is about 200 Oe; $\tau_\infty = 0.3 \cdot 10^{-12}$ sec and the corresponding activation energies E_a which are shown in Fig. 6. One of the key moments of the present study is the comparative Gd EPR analysis of the magnetic fluctuations for the different metalloxides, such as $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) [23,24], $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ (LBCO) [30], $(\text{La-Eu})_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LESCO) [25], $(\text{La-Nd})_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LNSCO) [8]. Note that for LBCO the measurements were restricted by the doping region in the vicinity of the well known T_c dip, whereas the last two series discussed in the previous part corresponded to the nonsuperconducting LTT phase. (Since the influence of the Nd magnetic moments for the LNSCO compound hinders the ESR measurements, the activation energy for this compound was estimated from the measurements of the nuclear spin relaxation on Cu and La nuclei [8]).

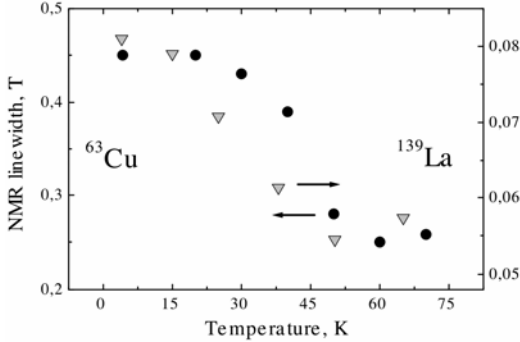


Fig. 7. The temperature dependence of the ^{63}Cu and ^{139}La NMR linewidths for the superconducting LSCO with $x = 0.12$

It is established [24] that for all LSCO based compounds the activation energy of magnetic fluctuations is enhanced near the 1/8 doping. This indicates the important role of the commensurability and gives evidence of the *plane* character of the inhomogeneous spin and charge distributions. The maximal activation energies are 80 K for $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, 144 K for $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$, 160 K for $(\text{La-Eu})_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ and 143 K for $(\text{La-Nd})_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Note that the

signatures of the bulk superconductivity [24] for $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ and $(\text{La-Eu})_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ become visible upon the suppression of the activation energy down to 80 – 85 K. It is possible to conclude that these values of the activation energy are probably the critical ones for the realization of the bulk superconducting state. Fluctuations with the higher activation energies are effectively pinned and suppress superconductivity.

The features of the phase separation in the superconducting LSCO were observed also in the $^{63,65}\text{Cu}$ and ^{139}La NMR [23,24,31,32]. The measurements of oriented powder samples in a magnetic field perpendicular to *c* axis revealed that for Sr content near 1/8 the central lines of the observed spectra both for Cu and La exhibit the broadening upon cooling below 40 - 50 K (Fig. 7). This is connected with the slowing down of the inhomogeneous magnetic fluctuations, which gradually freeze upon cooling. It allows us to estimate that the additional magnetic field at La nucleus is 0.015 T. If we consider that for the antiferromagnetic La_2CuO_4 the copper moment of $0.64 \mu_B$ induces the hyperfine field of 0.1 T at the La site [13], then the effective magnetic moment of copper in the superconducting LSCO is $\sim 0.09 \mu_B$.

IV. Conclusions

The Cu NQR analysis of the Eu doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ revealed that at 1.3 K the ground state of the LTT cuprates for moderate Sr content corresponds to the pinned stripe-phase and that the pinning is enhanced at the commensurability. Nonequivalent copper positions in the CuO_2 planes were found. One of them with a magnetic moment of $0.29 \mu_B$ is related to the AF correlated domains. From the behaviour of the NQR frequencies it follows that the effective charge of the domain walls separating these domains is almost independent on the Sr content x . The onset of the bulk superconductivity at larger x correlates with the dramatic

transformation of the NQR spectra, indicating the depinning of the stripe phase and the crossover from the quasistatic to dynamical regime.

The combined ESR and NMR measurements of the LTO cuprates with the bulk superconductivity make it possible to conclude that the inherent feature of their superconducting state is the dynamical nanoscale phase separation. In the vicinity of hole doping $x = 1/8$ this separation may be realized in a form of dynamic stripes – the corresponding enhancement of the spin-stiffness reveals the plane character of the spin (and charge) inhomogeneities. The characteristic fluctuation's frequencies are strongly inhomogeneous resulting in the coexistence of regions with quasistatic (frozen) and dynamical fluctuations.

According to our analysis the low temperature state of different lanthanum cuprates is strongly dependent on the spin-stiffness of the compound under study and it is possible to introduce the “critical” value of stiffness, which separates the compounds with the bulk superconducting phase from the nonsuperconducting ones.

V. Acknowledgements

The author dedicates this paper to the 70th birthday of Prof. B.I. Kochelaev – one of the pioneers of the ESR researches in the field of superconductivity.

This work was supported by RFBR through the Grant N 01-02-17533.

References

1. L.P. Gor'kov, A.V.Sokol, JETP Lett. 46 (1987) 420
2. D. Poilblanc and T.M. Rice, Phys. Rev., B 39, (1989) 9749; J. Zaanen and O. Gunnarson, Phys. Rev., B 40, (1989) 7391.
3. J.M. Tranquada *et al.*, Nature, 375, (1995) 561.
4. J.M. Tranquada, J. Phys. Chem. Solids, 59, (1998) 2150.
5. H.A. Mook *et al.*, Nature 395, (1998) 580.
6. H.P. Fong *et al.*, cond-mat/9902262.
7. A.W. Hunt *et al.*, Phys. Rev. Lett., 82, (1999) 4300.
8. G.B. Teitel'baum *et al.*, Phys.Rev.B 63 (2001) 020507(R).
9. G.B. Teitel'baum *et al.*, Phys.Rev.Lett., 84, (2000) 2949.
10. B. Büchner *et al.*, Physica, 185-189C, (1991) 903; Europhys. Lett., 21, (1993) 953.
11. T. Shimizu, J.Phys. Soc. Jpn., 62, (1993) 772.
12. R.L. Martin, Phys. Rev. Lett., 75, (1995) 744.
13. T. Tsuda *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., 57, (1988) 2908.
14. T. Imai *et al.*, Phys. Rev. Lett., 70, (1993) 1002.
15. G.M. Luke *et al.*, Hyp. Int., 105, (1997) 113.
16. M. Vojta, S. Sachdev, cond-mat/9906104.
17. B. Büchner *et al.*, Phys. Rev. Lett., 73, (1994) 1841.
18. K. Yoshimura *et al.*, Hyp. Int., 79, (1993) 867; S. Oshugi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., 63, (1994) 2057.

Different regimes of stripe fluctuations in the superconducting cuprates

19. P.C. Hammel *et al.*, Phys. Rev. B 57, (1998) R712.
20. J.M. Tranquada *et al.*, Phys. Rev. Lett., 78 (1997) 338.
21. T. Suzuki *et al.*, Phys.Rev.B 57 (1998) R3229.
22. K. Yamada *et al.*, Phys Rev B 57 (1998) 6165.
23. P. Kuhns *et al.*, Proc. of the Physical Phenomena in High Magnetic Fields-IV. Santa Fe, NM, World Scientific (2002), 297.
24. G.B. Teitel'baum *et al.*, JETP Lett 72 (2003) 726.
25. V. Kataev *et al.*, Phys Rev B 58 (1998) R11876.
26. S.E. Barnes, Adv. Phys. 30 (1981) 801.
27. V. Kataev *et al.*, JETP Lett, 56 (1992) 385; Phys. Rev. B 48 (1993) 13042.
28. D.P. Arovas *et al.*, Phys Rev Lett 79 (1997) 2871.
29. B. Lake *et al.*, Science 291 (2001) 832.
30. B.Z. Rameev *et al.*, Physica C 246 (1995) 309.
31. S. Oshugi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 63 (1994) 2057.
32. T. Goto *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997) 2870.

О СПИНОВЫХ ПЕРЕХОДАХ В КОМПЛЕКСАХ Fe(III)

Ю.В. Яблоков¹, В.В. Зеленцов², М.А. Аугустыниак-Яблокова¹,
А. Крупска¹, Е. Мрозински³

¹ *Институт Молекулярной Физики ПАН, Познань, Польша*

² *Московский Физико-Технический Институт, Долгопрудный, Россия*

³ *Институт Химии Вроцлавского Университета, Вроцлав, Польша*

Процесс перехода высокий спин (ВС) $\leftrightarrow$ низкий спин (НС) изучен в поликристаллах тиосеми-карбазонатов Fe(III) состава $M[Fe(Th-R-Sa)_2]$ с M , $R = Na$, H (**A**); NH_4 , $5-Br$ (**B**) и K , $5-Br$ (**C**) методом ЭПР при атмосферном и гидростатическом до 600 МПа давлениях в интервале температур 80 - 400 К. Измерены также $\chi(T)$ и μ_{eff} образцов для $T = 1.8 - 400$ К. В **A** спиновый переход (СП) является протяженным: μ_{eff} изменяется от $5.9 \mu_B$ при 330 К до $5.7 \mu_B$ при 50 К, после чего спадает до $3.4 \mu_B$ при 1.8 К. Анализ ширины линии ЭПР показал, что ΔB имеет обменное происхождение. НС комплексы (НСК) не распределяются среди ВСК статистически, а собираются в ограниченных областях структуры – в доменах. Плотность НСК в доменах повышается с понижением T (ΔB изменяется от $\sim 70 - 80$ мТ при 200 К до ~ 20 мТ при 80 К). В процессе СП ширина линии ΔB резко изменяется в двух областях температуры (240 – 236 К и 195 – 191 К), указывая на перераспределение НСК в доменах. В области 195 – 191 К СП-у сопутствует быстрое увеличение количества НСК.

Приложение внешнего давления P стимулирует СП, однако характер процесса (ВС) $\leftrightarrow$ (НС) зависит от T . При $T > 240$ К НСК не распределяются случайным образом, однако их плотность в областях скопления невысока ($\Delta B_{мин} > 50$ мТ). Приложение P ниже 236 К частично разрушает домены, часть НСК возвращается при этом в ВС состояние. При понижении T опыта область перестройки доменов смещается в сторону высоких P .

СП в **B** совершается в интервале температур 100 – 250 К (в интервале 150 - 200 К резко) и так же через образование доменов, но в отличие от **A** плотность НС комплексов в доменах нарастает очень быстро. Уже в начале регистрации ЭПР при $P_{атм}$ $\Delta B(240 \text{ К}) \sim 21$ мТ; $\Delta B(170 \text{ К}) \approx 13.7$ мТ. В области равного содержания НСК и ВСК при $T \sim 140$ К происходит резкий переход от раздельного существования фаз НСК и ВСК к распределенному состоянию комплексов. Давление приводит к СП, как и температура. При $P_{max} = 600$ МПа в новое спиновое состояние переходит примерно половина комплексов. Эта область P так же отвечает переходному состоянию кристалла. Она смещается в область более низких P при понижении T . СП в **C** происходит в интервале T 360 – 250 К. Его изучение позволило лучше осознать роль T и P в процессе спинового переход.

Процессы образования и деструкции доменов показывают определенный гистерезис. Нарастание плотности НСК в преддоменном состоянии характеризуют парные корреляции НС комплексов. Резкие трансформации

доменов определяются кооперативными эффектами. Процессу перехода кристалла с доменами НС комплексов к равновесному при данных T и P состоянию свойственны черты саморегулирования.

1. Введение

В настоящее время осознано, что область пересечения термов на диаграмме Танабэ-Сугано, имеющих наименьшую энергию и различную мультиплетность, определяет только возможность перехода магнитных ионов с конфигурацией $3d^4 - 3d^7$ из одного спинового состояния в другое [1-3]. Сам процесс перехода – его быстрота и область температур, в которой спиновый переход (СП) имеет место в различных соединениях, определяется другими факторами. Причиной, обуславливающей развитие СП, являются взаимодействия между комплексами в новом спиновом состоянии. Это непосредственно следует из того факта, что только в растворах комплексов «спин-активных» ионов соотношение количества комплексов в низко-спиновом (НС) и высоко-спиновом (ВС) состояниях определяется Больцмановской заселенностью соответствующих термов [3]. Всё многообразие спиновых переходов, среди которых можно назвать размытые и резкие, монотонные и ступенчатые, полные и незавершенные [2], присуще веществам в кристаллическом состоянии. Утверждение о существенной роли взаимодействий в спиновых переходах является почти очевидным, однако эту проблему нельзя считать решенной, и оно лишь подчеркивает ее важность.

Можно *a priori* ожидать, что сила и природа взаимодействий между комплексами одинакового спина должны зависеть от свойств комплекса и кристалла в целом, прежде всего – от их симметрии и от наличия структурных связей между комплексами в кристаллической решетке. В литературе рассматривались разные механизмы взаимодействий между комплексами, находящимися в одинаковых спиновых состояниях: электрон-фононная связь [4-6], упругие взаимодействия [7,8], кооперативные ян-теллеровские взаимодействия [9]. Имея в виду большой диапазон различий спиновых переходов (спиновый переход может простирается на несколько сотен градусов, а может совершаться в пределах нескольких градусов), естественно предполагать, что дело скорее всего не ограничивается каким-то определенным видом взаимодействий. Однако среди них можно выделить один вид: взаимодействие комплекса с кристаллической решеткой и через решетку друг с другом. Их можно определить термином упругие взаимодействия [7,8]. Их специфика в соединениях со спиновыми переходами обусловлена различием размеров ионов в разных спиновых состояниях, и они присущи всем структурам со спиновыми переходами [7,8].

Взаимодействия между комплексами одинакового спина, по крайней мере в начале процесса, должны иметь парный характер и быть

близкодействующими. Стало быть, для их осуществления концентрация комплексов должна быть достаточно высокой. Но процесс перехода неизбежно начинается с ничтожно малых концентраций комплексов в новом спиновом состоянии. Требуется выход из этой ситуации, и изучение процесса перехода имеет такое же большое значение, как и изучение его механизмов.

Еще на ранней стадии изучения СП было высказано предположение [4] о том, что спиновые переходы возникают в областях высокого содержания комплексов в новом спиновом состоянии, в доменах. Оно было воспринято исследователями, однако до последнего времени не удавалось получить прямых подтверждений существования доменов [10,11], не говоря уже о каких-либо сведениях об их структуре и организации. Нам удалось продвинуться в этом направлении, изучая с помощью электронного парамагнитного резонанса один из комплексов железа (III) – натриевую соль тиосемикарбазоната $\text{Fe(III) Na[Fe(Th-Sa)}_2\text{]}^-$, показывающего сильно растянутый спиновый переход [12,13]. Здесь мы приведем результаты изучения перехода $\text{BC} \leftrightarrow \text{HC}$ в двух других соединениях: $\text{NH}_4[\text{Fe(Th-5Br-Sa)}_2]$ и $\text{K[Fe(Th-5Br-Sa)}_2\text{]}$ [2], а также новые данные для $\text{Na[Fe(Th-Sa)}_2\text{]}$.

Названные соединения принадлежат к обширному классу тиосемикарбазонатов ароматических альдегидов железа (III) с общей формулой $\text{M}^+[\text{Fe(Th-R-Sa)}_2\text{]}^-$ [2,14]. Координационным полиэдром в этих соединениях является искаженный октаэдр $\text{Fe[O}_2\text{N}_2\text{S}_2]$ (рис. 1). Замещения M^+ и R приводят к различным типам спиновых переходов.

Традиционно спиновые переходы исследуются методами статической магнитной восприимчивости, гамма-резонансной и оптической спектроскопии и с помощью рентгеноструктурного анализа [1-3]. Использовался также и ЭПР, однако его роль ограничивалась главным образом фиксированием эффекта. Мы имели целью изучение процесса спинового перехода. Новый импульс исследования рассматриваемого феномена получили благодаря возможности экспериментальной реализации предсказанного ранее для этих соединений [15] спинового перехода под воздействием высокого (сотни МПа) давления. Впервые спиновые переходы при высоких давлениях наблюдались в комплексах Fe(II) [16], теоретическое обоснование предложено в [17,18].

Спиновые переходы в названных соединениях фиксировались нами путем измерений магнитной восприимчивости, сопутствующие явления изучались методом ЭПР в X- и Q-диапазонах при атмосферном и гидростатическом давлении.

2. Экспериментальные результаты

Синтез веществ описан в [2,14]. Известно [см. 2], что в зависимости от условий синтеза вещества при неизменном составе могут иметь разные области перехода из BC в HC состояние. Зависимость от температуры

магнитной восприимчивости $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{T-5Br-Sa})_2]$ нового синтеза ближе к таковой для образца $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{T-5Br-Sa})_2]$ (b) [2] с той только разницей, что СП для него завершается полностью в интервале до 300 К.

Структура соединений. Из исследуемых веществ кристаллическая структура детально расшифрована только для $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$, однако мотивы всех структур близки, а молекулы комплексов построены идентично. НС фаза $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$ кристаллизуется в орторомбической сингонии с пространственной группой P_{nca} [19]. Параметры элементарной ячейки $a = 21.179 \text{ \AA}$, $b = 11.755 \text{ \AA}$ and $c = 8.560 \text{ \AA}$. Ион Fe(III) координирован ONS-донорными атомами двух тиосемикарбазонатных лигандов (рис. 1). Атомы кислорода, азота и серы расположены в двух взаимно перпендикулярных плоскостях с O и S в *cis* и N в *trans* позициях. Значительных отличий в структуре органических частей лигандов не наблюдалось. Этого не скажешь о геометрии ВС и НС полиэдров. Во всех изученных соединениях ВС октаэдри имеют большие размеры и сильно искажены. Углы $L - \text{Fe} - L$ отличаются в них от таковых в правильном октаэдре на $\sim 20^\circ$. В ВС октаэдре длины связей Fe-S равны $2.44 \text{ \AA}$, а различия длин экваториальных связей Fe-N ($\sim 2.13 \text{ \AA}$) и Fe-O ($\sim 1.96 \text{ \AA}$) велики. В НС октаэдре углы $L - \text{Fe} - L$ отличаются от углов в правильном октаэдре не более, чем на 4° . Расстояния Fe-S равны $2.234 \text{ \AA}$, и длины экваториальных связей Fe-N ($\sim 1.925 \text{ \AA}$) и Fe-O ($\sim 1.946 \text{ \AA}$) различаются очень мало.

Магнитная восприимчивость. Магнитная восприимчивость была измерена в интервале температур 1.9 – 400 К с помощью Сквид-магнетометра типа MPMSXL-5. Использовался палладиевый эталон, магнитная восприимчивость которого при $T = 293.1 \text{ K}$ принималась равной $5.30 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$; были внесены поправки на диамагнетизм [20]. Сверхпроводящий магнит позволял варьировать магнитное поле от 0.1 до 5 Т.

На рис. 2 показаны температурные зависимости магнитных моментов изученных соединений. Спиновый переход $\text{BC} \leftrightarrow \text{НС}$ в $\text{Na}[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]$

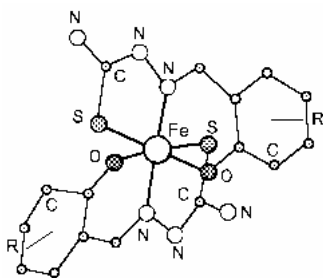


Рис. 1. Структура аниона $[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]^-$

происходит в очень широком интервале температур. Магнитный момент очень медленно уменьшается, начиная примерно с 300 К до 50 К, после чего его величина резко падает. Видно, что даже при самой низкой температуре СП не завершен. Спиновые переходы в $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{5Br-Th-Sa})_2]$ и $\text{K}[\text{Fe}(\text{5Br-Th-Sa})_2]$ являются более резкими, они занимают интервалы $\sim 150 \text{ K}$, но происходят в разных диапазонах температур, чем и оправдывают выбор для исследований именно этих соединений.

Спектры ЭПР. Измерения порошкообразных образцов при атмосферном давлении проведены в X-диапазоне на спектрометре RADIOPAN SE/X-2547 в интервале температур 80 – 360 К и в Q-диапазоне на спектрометре Varian E-12 при температурах 100 – 200 К. Измерения при гидростатическом давлении до 600 МПа в интервале температур 80 – 400 К выполнялись в X-диапазоне с помощью оборудования, описанного в [21].

Анализировались интегральная интенсивность сигнала НС комплексов $I_{\text{ннт}}$ и ее зависимость от температуры T и давления P , ширины линий $\Delta B_{\text{ннт}}$, g -факторы, интервалы T и P , в которых имел место СП, а также вид зависимостей $dI_{\text{ннт}}/dT$ и $dI_{\text{ннт}}/dP$. Особое внимание уделялось областям изменения параметров, в которых наблюдались особенности. Полезным для этой цели оказался так же контроль за эффективными параметрами: пиковой интенсивностью I слабо-полевой части производной сигнала ЭПР от максимума до нулевой линии и ее ширина на половине интенсивности ΔB . Адекватность изменения этих параметров и индивидуальной ширины сигнала ЭПР и его интегральной интенсивности иллюстрируют результаты их анализа, показанные ниже.

Спиновый переход в изученных соединениях обусловлен сменой основного термина 6S (электронная конфигурация $t_{2g}^3 e_g^2$, $S = 5/2$) на терм 2T (t_{2g}^5 , $S = 1/2$), расщепленный полями лигандов низкой симметрии и спин-орбитальным взаимодействием. ЭПР исследуемых комплексов в ВС состоянии представляет собой весьма протяженный спектр малой интенсивности. Причины этого обусловлены сравнимостью параметров тонкой структуры с величиной кванта $h\nu$ X-диапазона, большой шириной линий ЭПР, имеющих дипольную природу и не усредненных обменными взаимодействиями НС комплексов с ВС соседями, дополнительно размытых в спектрах ЭПР мелкокристаллических образцов. Эти спектры можно было наблюдать при высоких температурах, когда отсутствовали сигналы НС комплексов. При понижении температуры они быстро подавлялись возрастающими по интенсивности сигналами комплексов в НС состоянии.

Анализ спектров ЭПР НС комплексов опирался на сопоставление наблюдаемых сигналов, записанных в цифровом формате, теоретическим спектрам, которые строились с использованием стандартной программы WINEPR SimFonia Bruker. Для оценки количества НС комплексов использовали в качестве стандарта $BaMnF_4$.

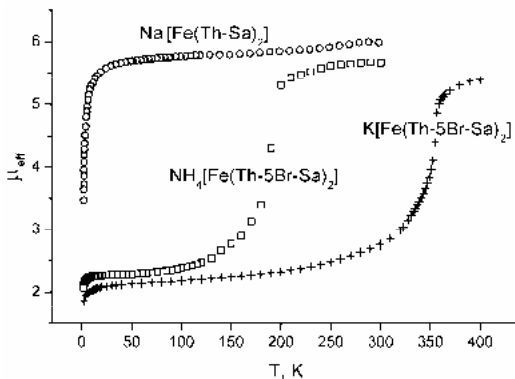


Рис. 2. Температурные зависимости магнитного момента соединений $M[Fe(Th-R-Sa)_2]$

2.1 Данные для $Na[Fe(Th-Sa)_2]$

Результаты изучения этого соединения описаны в [12,13]. Главные из них сводятся к следующему. Хотя СП развивается весьма медленно (см. рис. 2) и концентрация НС комплексов, не превышала (при температуре 254 К) 0.1 весовых %, сигналы НС комплексов с $g_x=2.293$; $g_y=2.193$ и $g_z=1.937$ уверенно детектировались, начиная с температур примерно 300 К. Ширина линии ΔB (270 К) равнялась ≈ 74 мТ и быстро уменьшалась с понижением температуры T (рис. 3). Плавное изменение ширины линии прерывалось резким ее уменьшением в области 240 – 236 К на 12 мТ (первый критический интервал, $T_c^{(1)\downarrow}=238$ К) и в области 195 – 191 К ($T_c^{(2)\downarrow}=193$ К). Ниже 180 К ΔB изменялась очень слабо ($\Delta B(150\text{ К})=21$ мТ). Наблюдался отчетливый гистерезис изменений ΔB в критических областях: $T_c^{(2)\uparrow}=203$ К, $T_c^{(1)\uparrow}=244$ К. В интервале измерений интегральная интенсивность сигнала возрастала примерно в 10 раз (двукратное увеличение сигнала в интервале 280 – 140 К обязано закону Кюри). Следовало ожидать, что зависимость интенсивности $I(T)$ и $I_{\text{инт}}(T)$ будет иметь в $T_c^{(1)}$ и $T_c^{(2)}$ особенности, как и $\Delta B(T)$. Однако оказалось, что скачок интенсивности имел место только при $T_c^{(2)}$. В области $T_c^{(1)}$ $I(T)$ ($I_{\text{инт}}(T)$) увеличивалась монотонно.

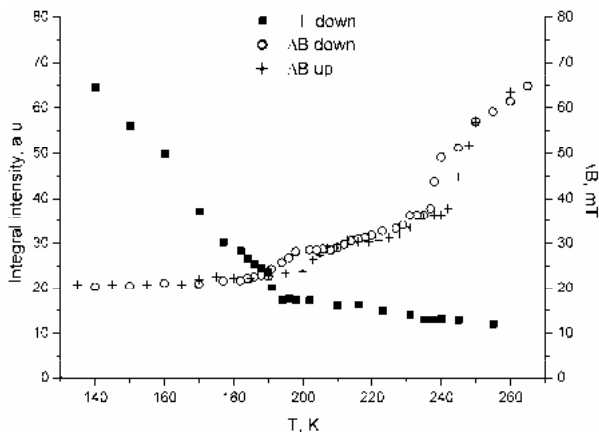


Рис. 3. Температурные зависимости интенсивности $I(T)$ и ширины линии $\Delta B(T)$ ЭПР комплекса $Na[Fe(Th-Sa)_2]$ при атмосферном давлении ($P = 0.1$ МПа)

Анализ поведения $\Delta B(T)$ привел нас к заключению [12], что уменьшение ширины линии обусловлено возникновением и усилением при понижении температуры обменных взаимодействий между НС комплексами. Как отмечалось, концентрация НС комплексов была крайне низкой. Ясно, что обменные взаимодействия между ними не могли бы возникнуть, если бы НС комплексы были распределены в массиве ВС комплексов статистически. Отсюда был сделан важный вывод, что начиная практически с момента своего зарождения, НС комплексы

имеют тенденцию группироваться в ограниченных областях структуры кристалла. (Мы исключили возможность релаксационного сужения линий ЭПР, а так же принципиально возможное сужение за счет эффектов быстрых внутренних переходов ВС – НС, interconversion effects; мы вернемся к обсуждению этих вопросов ниже). Вслед за Сораи и Секи [4] в литературе для обозначения скоплений комплексов в новом спиновом состоянии используется термин *домены*. (Подчеркнем, что их существование оставалось гипотетическим). Мы сохраним его, однако оговоримся, что реальное физическое содержание этого термина в случае спиновых переходов отличается от такового как в случае ферромагнетизма (область кристалла, целиком состоящая из магнитных комплексов с ориентированными магнитными моментами), так и от того смысла, который вкладывали в него исследователи, пытаясь обнаружить *домены* при явлениях cross-over (области структуры, целиком состоящие из комплексов в определенном спиновом состоянии).

Изучая зависимости $\Delta B(T)$ для $\text{Na}[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]$, мы показали, что плотность НС комплексов в доменах не постоянна, она увеличивается при понижении температуры, причем в областях $T_c^{(1)}$ и $T_c^{(2)}$ это увеличение происходит скачкообразно. Выше $T_c^{(1)}$ имеет место процесс формирования доменов. В первой критической области плотность НС комплексов в доменах резко увеличивается без возрастания их комплексов в кристалле. (Мы связываем этот процесс с тем, что накопление НС комплексов, имеющих меньшие чем ВС комплексы размеры и являющихся по существу дефектами структуры, в ограниченных областях кристалла выгодно энергетически. Плотность НС комплексов определяется при этом неким равновесием между близкодействующими упругими взаимодействиями НС комплексов друг с другом и с кристаллической решеткой и энергией их тепловых колебаний). Ниже $T_c^{(1)}$ этот процесс продолжается и завершается в области $T_c^{(2)}$, когда увеличение плотности НС комплексов в доменах сопровождается и увеличением числа или размеров доменов (ЭПР не позволяет детализировать это явление). Здесь вступают в силу эффекты дальнего действия.

Опыты с давлением проводили при разных температурах во всем интервале изменений $\Delta B(T)$. Заслуживают акцентирования следующие факты (см. рис. 4).

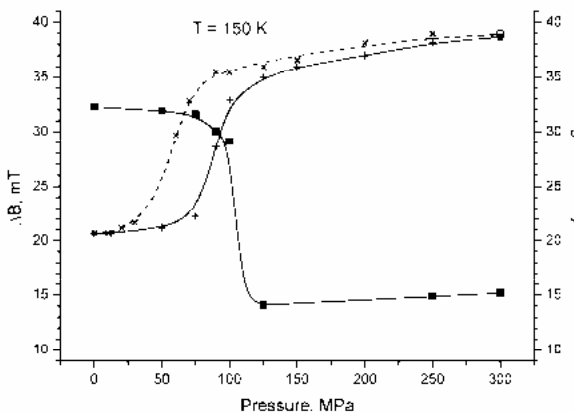


Рис. 4. Зависимости интенсивности $I(P)$ и ширины линии $\Delta B(P)$ ЭПР комплекса $\text{Na}[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]$ при $T = 150 \text{ K}$

а) Давление, как и температура, приводит к спиновому переходу.

б) При температурах выше $T_c^{(1)}$, т.е. выше критической температуры, при которой происходит выделение достаточно определенно сформировавшихся доменов, давление слабо влияет на процесс доменообразования. Например, при $T = 257$ К увеличение давления от 0.1 МПа до 300 МПа приводит к уменьшению ширины линии ЭПР от 62.3 мТ до 51.8 мТ. Распределение НС комплексов не является статистическим и в этих условиях. Процесс их группировки начался, однако о доменах говорить пожалуй рано, удобнее называть это состояние *преддоменным состоянием*, чтобы все-таки отличать его от состояния со статистически распределенными НС комплексами.

с) Интересным является результат воздействия давления на достаточно сформировавшиеся домены. С одной стороны, давление разрушает домены, переводя структуру в *преддоменное состояние* (в состояние, когда $\Delta B \approx 40$ мТ). С другой стороны, этот процесс сопровождается частичным обратным переходом НС $\rightarrow$ ВС (рис. 4). Дело выглядит следующим образом. НС комплексы как молекулы с центральным ионом, имеющим размеры на 0.2 Å меньшие, чем окружающие молекулы, являются дефектами структуры. С точки зрения минимума энергии системы оказывается выгодным, когда эти дефекты не изолированы. При атмосферном давлении плотность молекул в новом спиновом состоянии определяется равновесным соотношением между выигрышем в упругой энергии за счет объединения дефектов и тепловой энергией молекул, стремящейся, вообще говоря, разрушить устанавливающееся расположение комплексов. Прикладываемое давление создает новые условия для оптимального при данной температуре соотношения между параметрами “бездефектных” и “дефектных” областей кристаллической решетки. В результате давление приводит к некоему состоянию с более равномерным распределением дефектов – комплексов железа (III) в НС состоянии. При этом теряется какая-то доля энергии, которая способствовала переходу ВС $\rightarrow$ НС и равновесие смещается в сторону ВС состояний. Дальнейшее повышение давления P снова приводит к продолжению процесса перехода ВС $\rightarrow$ НС.

д) Чем ниже температура опыта, тем большие давления требуются для осуществления этого процесса.

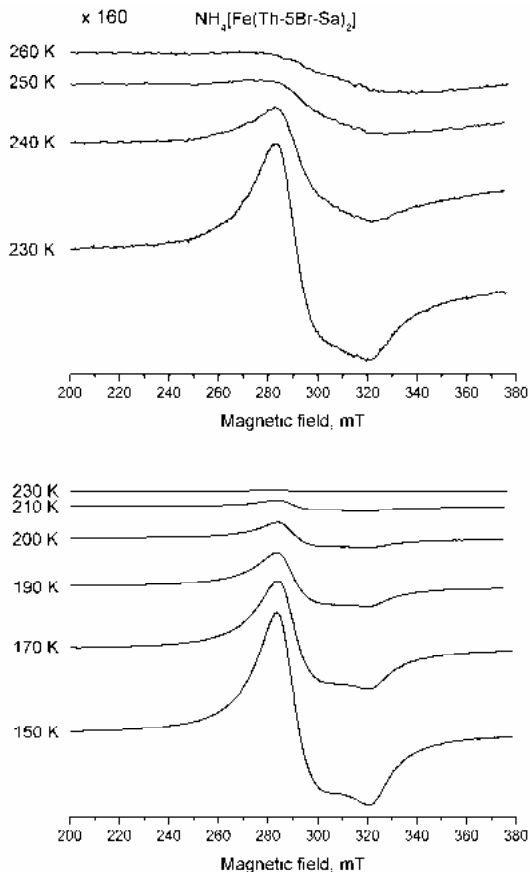
2.2 Данные для $NH_4[Fe(Th-5-Br-Sa)_2]$.

Спектры ЭПР при атмосферном давлении записывали в интервале температур 80 - 300 К. Изучались так же мелкокристаллические образцы. Спектры ЭПР при гидростатическом давлении до 500 - 550 МПа регистрировались при температурах 312.5 К, 292 К, 283 К, 273 К, 250 К, 230 К, 199 К и 150 К.

$I(T)$ и $\Delta B(T)$ при $P_{атм}$ (0.1 МПа). Сигнал ЭПР, имеющий форму, типичную для центров с $S = 1/2$ и анизотропным g-фактором с $g_{\perp} = 2.197 \pm 0.005$ и $g_{\parallel} = 1.971 \pm 0.003$, уверенно детектировался при понижении температу-

Рис. 5. Температурная зависимость спектра ЭПР комплекса $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$ при $P = 0.1 \text{ МПа}$

ры, начиная с T около 260 К (рис. 5) и был отнесен к возникающим в процессе СП низко-спиновым комплексам Fe(III). (Измерения в Q-диапазоне позволили выявить ромбичность g-фактора: $g_x = 2.213 \pm 0.003$, $g_y = 2.187 \pm 0.003$). В отличие от $\text{Na}[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]$ асимметрия формы сигнала была заметной с самого начала его наблюдения, а уже при $\sim 240 \text{ К}$ стала отчетливой. Интегральная интенсивность сигнала (и $I(T)$) возрастала при понижении температуры до 80 К в десятки раз быстрее, чем следовало ожидать для обычного повышения интенсивности сигнала ЭПР за счет увеличения разности заселенностей спиновых подуровней (рис. 5, 6). Это



хорошо согласуется с зависимостью $\mu_{\text{эф}}(T)$, приведенной на рис. 2. В начале регистрации ширина линии ΔB составляла $\sim 50 - 60 \text{ мТ}$, затем резко уменьшалась до $\sim 20 \text{ мТ}$ при 240 К и до $\sim 16 \text{ мТ}$ при 220 К и более медленно до $13.7 - 13.9 \text{ мТ}$ при 165 - 155 К, после чего очень резко возрастала до 18.7 мТ при $T = 140 \text{ К}$, а затем до 19.4 мТ при 120 К, не изменяясь при дальнейшем понижении температуры до 80 К (рис. 6). Наименьшим значениям ΔB отвечало некоторое замедление роста интенсивности I сигнала в указанном интервале температур со средним значением $T = T_c = 160 \text{ К}$. (Интегральная интенсивность $I_{\text{инт}}$ при этом увеличивалась монотонно). Эта температура примерно отвечает средней температуре интервала 240 – 80 К, в котором наблюдалось сильное увеличение сигнала ЭПР комплексов с

$S = 1/2$ от начала их детектирования до окончания резкого роста, а так же примерно половинной величине сигнала ЭПР при $T = 80$ К. (Следует отметить, что в зависимости $I_{\text{инт}}(T)$ отсутствовал какой-либо гистерезис, тогда как для $\Delta B(T)$ он наблюдался. Данные, приведенные на рис. 6, иллюстрируют целесо-

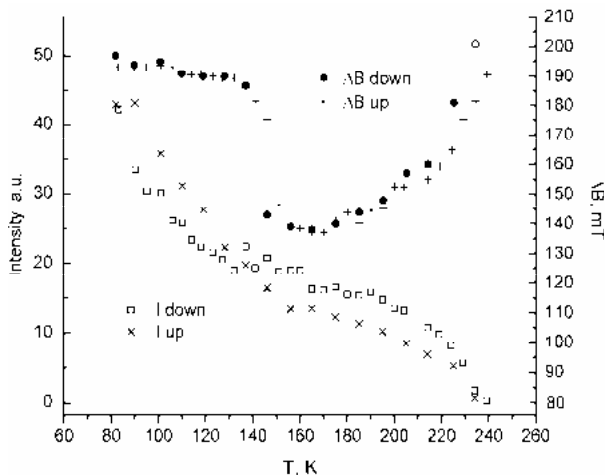


Рис. 6. Температурные зависимости интенсивности $I(T)$ и ширины линии $\Delta B(T)$ ЭПР комплекса $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$ при атмосферном давлении ($P = 0.1$ МПа)

образность использования параметра $I(T)$ наряду с $I_{\text{инт}}(T)$. Последний правильно пе-

редает увеличение количества НС комплексов в процессе СП, тогда как первый, чувствительно реагируя на особенности изменения параметров спектра ЭПР, позволяет судить о важной характеристике процесса СП – особенностях процесса доменообразования; см. ниже).

$I(P)$ и $\Delta B(P)$ при фиксированных температурах. В этих опытах давление увеличивалось от 0.1 МПа до 500 – 550 МПа. Использовался один и тот же образец. Как и при изменениях температуры при атмосферном давлении, повышение P при неизменной температуре приводит к спиновому переходу из ВС состояния ионов Fe(III) в НС состояние и к наблюдению сигналов ЭПР НС комплексов Fe(III). Полученные данные суммированы в Таблице 1 и на рис. 7 и 8. Как видим, гидростатическое давление приводит к спиновому переходу даже при температуре $T = 312\text{K}$, значительно ($>$ чем на 50 К) превышающей температуру, при которой ЭПР начинает фиксировать появление НС комплексов при атмосферном давлении. Его начало (снова с точки зрения ЭПР) имеет место при $P \approx 300$ МПа. Отметим следующие особенности спинового перехода в условиях гидростатического давления.

Как и в опытах при $P = \text{const}$, в случае $T = \text{const}$ при наблюдении процесса перехода по параметру $I(P)$ процесс выглядит двухступенчатым. Начиная с температуры 292 К, при увеличении давления наблюдается переходная область, которую удобно характеризовать средним значением

$\langle P \rangle = P_c$, в которой изменяется характер поведения $I(P)$ и $\Delta B(P)$ (рис. 7 и 8). Переходная область имеет протяженность $\sim 120 - 150$ МПа и разделяет зависимости, наблюдаемые при СП, на две ветви примерно одинаковой протяженности в шкале P . Одна отвечает давлениям $P < P_c$, вторая $P > P_c$. На зависимости $I(P)$ наблюдается уменьшение интенсивности сигнала ЭПР в окрестности P_c . В то же время анализ интегральных интенсивностей приводит к монотонному увеличению $I_{\text{инт}}(P)$. Переходная область смещается в сторону меньших P при понижении T . При доступных в наших опытах давлениях не удавалось наблюдать обе ветви одновременно, то есть не удавалось наблюдать СП полностью в одном цикле изменения параметров. Каждая ветвь в отдельности занимает интервал давлений ~ 300 МПа, и эти интервалы сохраняются в опытах при различных температурах, смещаясь вместе с переходной областью в сторону меньших значений P при понижении температуры.

Зависимость $I(P)$ при повышении и понижении давления показывает определенный гистерезис. Выделим для каждой ветви зависимости $I(P)$ точки на ее середине и обозначим их как $P_{1/2}\uparrow$ и $P_{1/2}\downarrow$. Тогда $(P_{1/2}\uparrow - P_{1/2}\downarrow) = \Delta P$ характеризует величину гистерезиса, а $(P_{1/2}\uparrow + P_{1/2}\downarrow)/2 = P_{1/2}$.

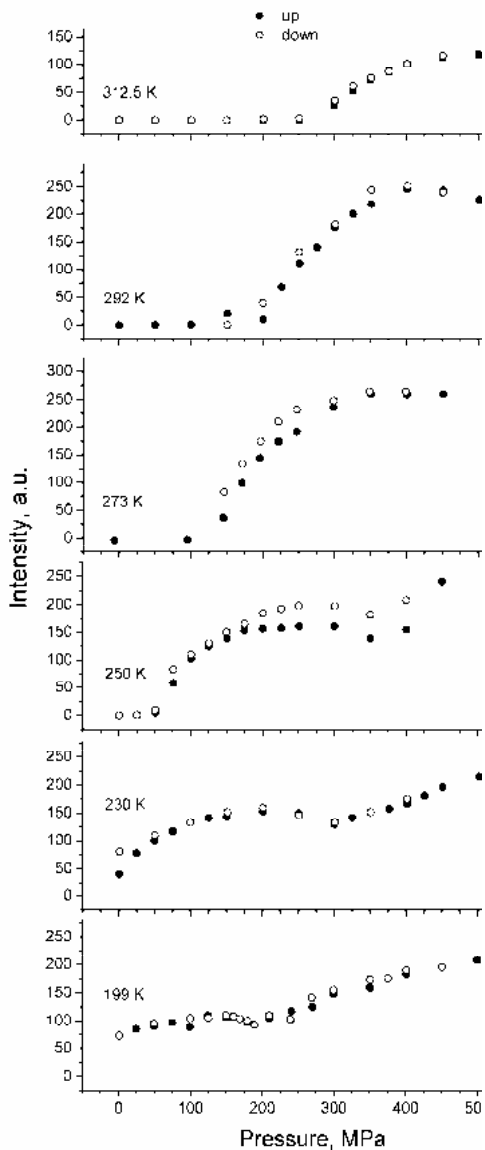


Рис. 7. Зависимости интенсивности $I(P)$ сигнала ЭПР комплекса $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$ при температурах от 312 К до 199 К

Величина гистерезиса невелика, но надежно превышает ошибки обработки опытных данных. Заметим, что в измерениях магнитной восприимчивости, как и в зависимостях $I_{\text{инт}}(P)$, гистерезис отсутствует.

Рассмотрим особенности поведения ширины линии $\Delta B_T(P)$. Мы уже отмечали, что давление приводит к СП даже в том случае, когда температура намного выше той, при которой начинается СП при атмосферном давлении. Например, при $T = 312.5$ К для начала СП требуется приложить $P \approx 250 - 300$ МПа. (Сигнал детектируется раньше, чем можно надежно измерять его ширину). При этом начальная ширина линии $\Delta B_{312.5}(300) \approx 24$ мТ, то есть существенно меньше начальной ширины линии, наблюдаемой при атмосферном давлении (см. Табл. 1 и рис. 6 и 8).

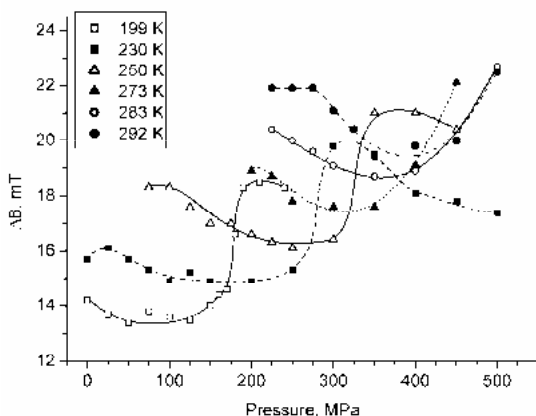


Рис. 8. Зависимости ширины линии $\Delta B(P)$ ЭПР комплекса $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th}-5\text{Br}-\text{Sa})_2]$ при температурах от 312 К до 199 К

После появления сигнала ЭПР в опытах с давлением $\Delta B(P)$ уменьшается, достигает минимальной величины и затем достаточно резко возрастает. Начальная ширина линии при появлении НС комплексов, как и требуемое для этого давление, тем меньше, чем ниже температура опыта (конечно, величины давлений зависят от чувствительности спектрометра; последняя ниже у оборудования для наблюдения ЭПР под давлением, поэтому приводимые величины являются относительными; универсальным является параметр $\Delta B_T(P)$ Минимальные значения ширины линии также уменьшаются. Стоит однако отметить, что они не достигают величины 13.7 мТ, которая наблюдается при понижении температуры при атмосферном давлении. Давления, при которых происходит резкое уширение сигнала ЭПР, примерно отвечают нижней границе переходной области.

2.3. Данные для $K[Fe(Th-5Br-Sa)_2]$.

Согласно данным магнитной восприимчивости спиновый переход в этом соединении начинается при температурах ≥ 360 К. Широкий и почти симметричный сигнал ЭПР, имевший при $T = 353$ К ширину $\Delta B \approx 55$ мТ, сужался при понижении температуры и при 295 К ΔB равнялась 30.4 мТ (рис. 9). Наблюдалась явно выраженная анизотропия g -фактора ($g_x = 2.252 \pm 0.005$; $g_y = 2.164 \pm 0.005$ $g_z = 1.985 \pm 0.005$). Интенсивность возрастала при понижении температуры монотонно, без каких-либо искажений кривой $I(T)$ (рис. 10). Давление, приложенное при $T = 366$ К, быстро привело к появлению сигнала НС комплексов: Широкая, с $\Delta B \sim 60$ мТ, линия ЭПР появилась уже при давлении 50 - 75 МПа. Ее сужение при увеличении давления было меньшим, чем при понижении температуры, однако оно имело место, и при 550 МПа мТ ΔB имела величину порядка 43 мТ (рис. 11).

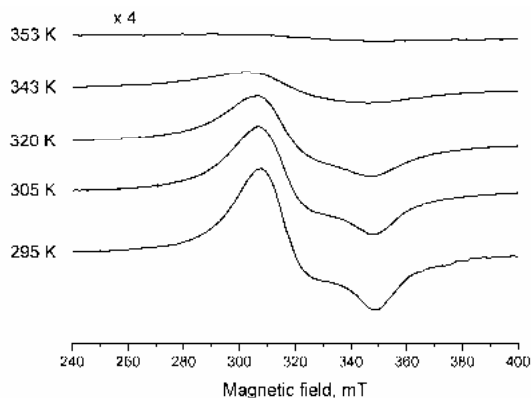


Рис. 9. Температурная зависимость спектра ЭПР комплекса $K[Fe(Th-5Br-Sa)_2]$ при $P = 0.1$ МПа

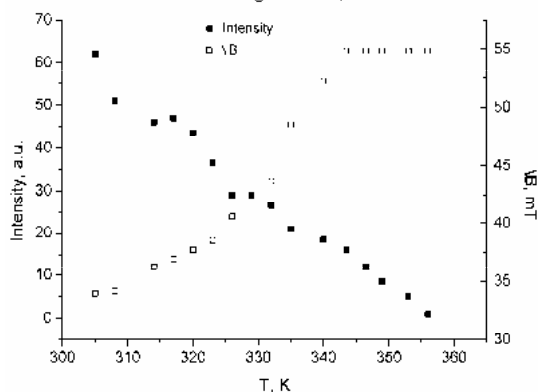


Рис. 10. Температурные зависимости интенсивности $I(T)$ и ширины линии $\Delta B(T)$ ЭПР комплекса $K[Fe(Th-5Br-Sa)_2]$ при атмосферном давлении ($P = 0.1$ МПа)

3. Обсуждение результатов

Данные магнитной восприимчивости и ЭПР показывают, что в изучаемых соединениях имеет место СП, который наблюдается как при понижении температуры, так и при повышении давления. Спиновый переход в разной степени размыт. Выводы магнитной восприимчивости $\chi(T)$ и ЭПР относительно интервала температур, в котором преимущественно совершается переход $BC \Leftrightarrow HC$, в основном идентичны. ЭПР позволяет анализировать только сигналы HC комплексов. Хотя для $NH_4[Fe(Th-5-Br-Sa)_2]$ спектры BC комплексов при $T > 260$ К, при которых HC комплексы не наблюдаются, выражены более отчетливо, чем в случае $Na[Fe(Th-Sa)_2]$, их было бы трудно расшифровывать надежно из-за очень больших ширин линий. Причины этого аналогичны отмеченным выше. К тому же BC спектры быстро подавляются возгорающими при понижении температуры сигналами HC комплексов. Сказанное здесь в еще большей степени относится к спектрам $K[Fe(Th-5Br-Sa)_2]$, в которых СП совершается при более высоких температурах. Все это однако не обедняет результаты эксперимента, поскольку ничто не мешает изучению более простых спектров 2A -состояния HC комплексов, имеющих электронный спин $S = 1/2$.

Рост интенсивности сигналов при понижении температуры за счет увеличения числа HC комплексов многократно превышает в использованных интервалах температур бальмановское увеличение интенсивности. Параметр $I(T)$ коррелирует с величиной $\mu_{\text{эф}}(T)$. Мы будем так же иметь его в виду, характеризуя полноту перехода при гидростатическом давлении.

Начнем обсуждение с рассмотрения ширин линий наблюдаемых

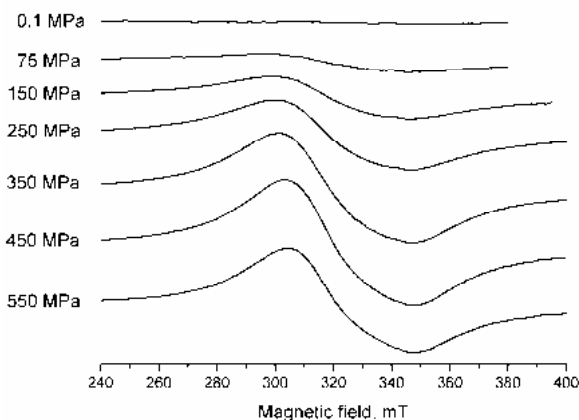


Рис. 11. Зависимость спектра ЭПР комплекса $K[Fe(Th-5Br-Sa)_2]$ от давления при температуре 366 К

сигналов ЭПР и их температурных зависимостей. HC комплексы возникают в массиве BC комплексов. Магнитные моменты BC комплексов с $\mu_{\text{эф}} BC \approx 5.9 \mu_B$, окружающих HC комплексы, создают на них значительные локальные магнитные поля и должны приводить к большим ширинам линий ЭПР HC комплексов. Например, при зарождении HC комплексов в $Na[Fe(Th-Sa)_2]$ при высоких температу-

рах ширина линии ЭПР имела дипольную природу и $\Delta B \sim 130$ мТ [12]. Сигналов с такими величинами ΔB в начале перехода следовало ждать и в других изученных соединениях. Однако в $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{T-5Br-Sa})_2]$ $\Delta B_{0,1}(260)$ не превышала 22 мТ. При этом очень важно, что достаточно узкие сигналы наблюдались сразу, с начала их детектирования. При понижении T , как и в случае $\text{Na}[\text{Fe}(\text{T-Sa})_2]$, наблюдалось дополнительное сужение линии ЭПР. С точки зрения условий наблюдения ЭПР при изучаемых спиновых переходах интересно соединение $\text{K}[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$, в котором переход сдвинут в область высоких температур. Начальная ширина сигнала ЭПР при $T = 366$ К велика (~ 55 мТ), однако она также уменьшается при понижении температуры и уже при комнатной температуре становится заметно меньшей (~ 30 мТ).

Приведенные данные показывают, что в различных веществах $\Delta B(T)$ имеют разные величины при разных температурах, однако тенденции температурных изменений имеют одинаковый характер. Наблюдаемые ширины линий обусловлены прежде всего развитием спинового перехода, а не интервалом температур, в котором он наблюдается. Это позволяет не рассматривать в качестве причины сужения линии при понижении T парамагнитную релаксацию. Это заключение подтверждают также данные опытов с давлением (см. также [13]), которое может приводить как с сужению, так и к расширению линий ЭПР независимо от того, при какой температуре происходят изменения ширины линии ЭПР.

Известно, что естественной причиной сужения линий ЭПР могут быть обменные взаимодействия между родственными партнерами. Однако обменные взаимодействия являются близкодействующими, быстро затухая при увеличении расстояния между парамагнитными комплексами. Они не могли бы быть эффективными в начале процесса СП при статистическом распределении возникающих НС комплексов. Изучая $\text{Na}[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]$, мы пришли к заключению [12], что НС комплексы в процессе развития СП не располагаются в решетке ВС комплексов случайным и независимым образом, но группируются в ограниченных областях структуры (доменах) на расстояниях, достаточных для возникновения обменных взаимодействий. Более того, наблюдаемые изменения ширин линий свидетельствуют о том, с изменением температуры T обменные взаимодействия изменяются. Поскольку сам по себе обмен, как и магнитные диполь-дипольные взаимодействия, от температуры не зависит, его усиление может быть связано только с изменением взаимного расположения НС комплексов, прежде всего с изменением их плотности в доменах. Эти выводы должны быть сделаны и для новых представителей рассматриваемого класса веществ.

Низко спиновые комплексы группируются в доменах с самого начала спинового перехода. Этому способствуют внутримолекулярные переходы НС–ВС, трансляционная симметрия кристалла и тот факт, что близкое расположение

«дефектов» – НС комплексов выгодно энергетически. Процессу агломерации НС комплексов противодействуют тепловые колебания ионов и комплексов. Поэтому естественно, что равновесные условия, определяющие плотность НС комплексов в домене, зависят от температуры.

В $\text{Na}[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]$ СП сильно растянут, скорость накопления НС комплексов невелика, и это позволило исследовать процесс доменно-образования детально. В $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$ область СП значительно уже. Плотность НС комплексов в доменах нарастает стремительно и уже к моменту наблюдения линии ЭПР являются обменно-суженными. Однако плотность эта не максимальна и увеличивается при понижении температуры от 240 К до $\sim 155 - 165$ К (рис. 3), сопровождаясь усилением обменных взаимодействий и уменьшением ширин линий ΔB . Мы отмечаем при описании экспериментальных результатов для $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$, что при $P = 0.01$ МПа к температурному интервалу $155 - 165$ К $c < T > = T_c = 160$ К в НС состояние переходит примерно половина комплексов железа. Наблюдаемое поведение $I(T)$ и $\Delta B(T)$ показывает, что при дальнейшем увеличении концентрации НС комплексов уже не происходит выделение доменов с ними. Ниже T_c условия, способствующие локализации НС комплексов, имеющих меньшие размеры, в доменах и определяемые выигрышем энергии данной области решетки, распространяются на весь кристалл. Домены перестают существовать в том виде, который они имели ниже T_c^{-1} . Перестройка кристаллической решетки происходит в узком интервале температур $150 - 130$ К, причем особенно резко в окрестности $T = 145$ К, примерно на 15 К меньшей T_c и обусловлена вероятно тем, что разделение кристалла на области, обогащенные комплексами, отличающимися своими размерами, не отвечает равновесному состоянию кристаллической структуры. Сказанное иллюстрируют изменения ширины линии ЭПР ΔB , показанные на рис. 6. Тот факт, что температура, вообще говоря, препятствует образованию доменов, иллюстрируют данные для $\text{K}[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$, которому вообще не свойственны домены с высокой плотностью РС комплексов.

Гидростатическое давление, как и понижение температуры, приводит к спиновому переходу, даже если оно прикладывается при температуре, более чем на 50 К превышающей начало перехода при атмосферном давлении. В принципе, это естественный результат, поскольку сжатие кристалла способствует условиям его перехода к состоянию, в котором комплексы имеют меньшие размеры. Ожидаемым можно считать и тот факт, что чем ниже температура опыта, тем меньшие давления требуются для начала спинового перехода. Примечательно, что и в случае спиновых переходов, вызываемых давлением, ширины линий ЭПР НС комплексов так же имеют обменную природу (это подтверждают данные на рис. 5-8). Следовательно, и в этих условиях спиновый

переход начинается с образования доменов. Можно отметить, что когда давление прикладывалось при высоких температурах, плотность НС комплексов в доменах оказалась большей, чем в опыте с понижением T при атмосферном давлении, но так же монотонно возрастала при понижении T опыта. (Температурам 312 К, 292 К, 283 К, 273 К и 250 К отвечали $\Delta B_{\text{нач}} \approx 22.1$ мТ, 21.9 мТ, 20.5 мТ, 19 мТ и 18.4 мТ; при атмосферном давлении $\Delta B_{\text{нач}}$ при 260 К была равна 50 – 60 мТ и при 40 К ≈ 20.2 мТ). Эти данные указывают на аддитивность воздействия температуры и давления на спиновый переход. В то же время минимальная ширина линии при понижении T при атмосферном давлении оказалась меньше (то есть плотность – выше), чем при совместном действии температуры и давления воздействия температуры, указывая на то, что воздействие давления на СП проявляют свою специфику.

На примере $\text{Na}[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]$ мы видели, что при медленном развитии спинового перехода, когда удавалось фиксировать состояния с малым содержанием НС комплексов и рассредоточенными доменами, давление вообще не способствует высокой концентрации НС комплексов. Его действие либо ограничивается созданием областей с «преддоменной» плотностью НС комплексов, либо приводит к трансформации доменов (если давление прикладывается в условиях развитых доменов). Когда же процесс перехода ВС – НС протекает быстро и доля доменов в общей структуре кристалла является значительной, давление не препятствует доменообразованию (хотя остаются в какой-то мере и его «сдерживающие» тенденции, что проявляется в величинах наибольших плотностей НС комплексов (минимальных значений ΔB) в опытах с постоянными значениями P или T). Схожесть и различия воздействия температуры и давления на СП видны так же в особенностях процесса СП в переходной области.

Особенности поведения ширин линий ЭПР, а стало быть и особенности, связанные с наличием или отсутствием доменной структуры НС комплексов в области перехода, отвечающей примерно равному содержанию ВС и НС комплексов (см. рис. 5-9), наблюдались как и в опыте с понижением T при $P = 0.1$ МПа, так и в экспериментах с давлением при $T = \text{const}$. В то же время, поведение $\Delta B_P(T)$ и $\Delta B_T(P)$ при разных температурах имело различный характер. Из рис. 5-8 и Табл. 1 видно, что если в первом случае скачкообразное изменение ΔB наблюдалось ближе к окончанию переходной области (при понижении T), то во втором такое поведение ΔB предшествовало переходной области. Далее, начало и следующее за ним развитие спинового перехода до примерно равного содержания ВС и НС комплексов во всех случаях сопровождалось сужением линий ЭПР, показывая, что и в этих условиях процесс идет через образование доменов. Однако, если при низких температурах, начиная с 250 К и ниже, переход от доменов к более равномерному распределению НС комплексов по объе-

му образца при повышении давления был резким (см. поведение $\Delta B(P)$ на рис. 8), занимая область давлений ≤ 50 МПа, то при температурах от 273 К до 312 К быстрота увеличения $\Delta B(P)$ после P_c была примерно такой же, как при $P < P_c$.

Наконец, обратим внимание на различия прямого и обратного процессов доменообразования. Можно считать, что агрегации НС комплексов в доменах, например при $P < P_c$, и переходу от структуры, включающей фазы ВС и НС комплексов, к ее состоянию с примерно равным распределением комплексов в разных спиновых состояниях отвечает выигрыш определенного количества энергии. Обратный процесс требует отличающихся количеств тепловой энергии (когда изменяется T при $P = \text{const}$) или упругой энергии (когда изменяется P при $T = \text{const}$). В результате оказывается возможным наблюдение весьма специфического явления: гистерезиса процесса образования и трансформации доменов НС комплексов. В энергетический баланс этих процессов дают вклад и локальные и кооперативные взаимодействия между комплексами и решеткой. При резко происходящих переходах различить их затруднительно. Можно, однако, полагать, что энергетические характеристики, связанные с упругими свойствами деформирующейся решетки, идентичны независимо от того, как протекает спиновый переход. Это делает особенно ценными результаты, полученные при изучении растянутого перехода в $\text{Na}[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]$, а так же результаты опытов с давлениями. Мы надеемся, что дальнейшее изучение обсуждаемых явлений позволит глубже понять их и количественно охарактеризовать эффекты близких и далеких корреляций в явлениях спиновых переходов.

4. Заключение

Изучение методом ЭПР спинового перехода в кристаллах $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$ и $\text{NH}_4[\text{Fe}(\text{Th-5Br-Sa})_2]$ вместе с проведенным ранее исследованием $\text{Na}[\text{Fe}(\text{Th-Sa})_2]$ [12,13] привело к надежным заключениям о том, что процесс перехода осуществляется через образование доменов, преимущественно содержащих комплексы в новом, НС состоянии. Такой подход анализировался в литературе теоретически на протяжении нескольких десятков лет, но только теперь получил экспериментальные подтверждения.

Спиновые переходы как физико-химическое явление обладают многими чертами, присущими фазовым переходам 1-го рода. В этом отношении обнаруженные нами явления доменообразования естественно вписываются в схемы переходов с элементами структуры – зародышами новой фазы в массиве прежней фазы. Вместе с тем, полученные результаты содержат сведения о новых чертах, присущих процессам доменообразования. Обнаружение трансформаций доменов при их переходе к равновесному состоянию в изменяющихся физических условиях свидетельствует о процессе развития новой фазы –

в нашем случае фазы комплексов в новом спиновом состоянии – как о процессе, которому свойственны черты саморегулирующейся системы.

Мы рассматриваем процессы образования доменов и их преобразования в структуры, отвечающие новой фазе НС комплексов с неизменной средней плотностью по всему объему кристалла, как процессы, обусловленные наличием близко- и дальне-действующих корреляций между комплексами в определенном спиновом состоянии и кристаллической решеткой. Мы полагаем, что анализ обнаруженных закономерностей, наглядно проявляющихся в поведении ширины линий ЭПР и их особенностей, позволит количественно охарактеризовать эти корреляции и процессы в целом.

Таблица 1. Данные о параметрах, характеризующих формирование доменов в $NH_4[Fe(Th-5Br-Sa)_2]$

T, K	1-я ветвь						2-я ветвь		
	P в МПа			ΔB в мТ			МПа		
	$P_{1/2}$	$\Delta P_{1/2}$	$\Delta B_{нач}$ (при P)	$\Delta B_{мин}$ (при P)	δP (разр дом)	P_c	$P_{1/2}$	$\Delta P_{1/2}$	$P_{насыщен}$
312.5	328.5	11				> 500			
292	250	20	22 (280)	19.8 (400)	400–500	≥ 500			
283			20.5 (220)	18.9 (350)	400–500				
273	188	24	19 (180)	17.6 (300)	350–450	450			
250	86.5	14	18.5 (100)	16.2 (250)	300–350	350			
230	28	14	16 (0.1)	14.8 (160)	250–300	300	425	10	> 500
199	< 0.1		14.2 (< 0.1)	13.5 (120)	150–180	200	375	15	500
150							275		400

$P_{1/2}$ – давление, определяющее среднюю точку 1-ой и 2-ой ветвей зависимости $I(P)$; $\Delta P_{1/2}$ – величина гистерезиса образования доменов (по величине плотности НС комплексов); $\Delta B_{нач}$ – ширина линии ЭПР при давлении P , определяющем начало регистрации ЭПР; $\Delta B_{мин}$ – ширина линии ЭПР, отвечающая максимальной плотности НС комплексов в доменах; δP – область давлений, в которой происходит разрушение доменов; $P_{насыщен}$ – давление, характеризующее завершение процесса перехода ВС $\rightarrow$ НС.

Литература

1. P. Gütllich, Struct. Bonding (Berlin) 44 (1981) 83.
2. В.А. Коган, В.В. Зеленцов, Г.М. Ларин, В.В. Луков, Комплексы переходных металлов с гидразонами. Москва, Наука, 1990, стр. 85-110.
3. P. Gütllich, A. Hauser, H. Spiering, Angew. Chem. Int. Ed. Engl. 33 (1994) 2024.
4. H. Sorai, S. Seki, J. Chem. Phys. Solids 35 (1974) 555.
5. В.И. Шипилов, В.А. Фидирко, В.В. Зеленцов, В.М. Мокшин, ФТТ 21 (1979) 3553.
6. В.В. Зеленцов, В.М. Мокшин, С.С. Соболев, В.И. Шипилов, Хим. Физика 7 (1988) 51.
6. H. Spiering, T. Kohlhaas, H. Romstead, A. Hauser, C. Bruns-Yilmaz, J. Kusz, P. Gütllich, Coord. Chem. Rev. 190-192 (1999) 629.
7. H. Spiering, N. Willenbacher, J. Phys.: Condens. Matter 1 (1989) 10089.
8. T. Kambara, J. Chem. Phys. 70 (1979) 4199.
9. E.W. Muller, H. Spiering, P. Gütllich, J. Chem. Phys. 79 (1983) 1439.
10. G. Molnar, A. Boussekson, A. Zwick, J. McGarvey, Chem. Phys. Lett. 367 (2003) 593.
11. Yu.V. Yablokov, V.V. Zelentsov, M. Augustyniak-Jablokow, A. Krupska, J. Mrozinski, Mater. Science 21 (2003) 215.
12. V.V. Zelentsov, Yu.V. Yablokov, M. Augustyniak-Jablokow, A. Krupska, J. Mrozinski, Chem. Phys. to be published.
13. В.В. Зеленцов, Российский химический журнал 49 (1996) 86.
14. С.С. Соболев. Диссертация к.ф.-м.н. «Природа аномальных спиновых переходов в парамагнитных соединениях железа». Москва, МФТИ, 1981, 133с.
15. D.C. Fisher, H.G. Drickamer. J. Chem. Phys. 54 (1971) 4825.
16. V. Ksenofontov, H. Spiering, A. Sreiner et al., J. Phys. & Chem. Solids. 60 (1999) 393.
17. G.G. Levchenko, V. Ksenofontov, A.V. Stupakov, H. Spiering, Y. Garcia, P. Gütllich, Chem. Phys. 277 (2002) 125.
18. Н.А. Рябова, В.И. Пономарев, В.В. Зеленцов, В.И. Шипилов, Л.О. Атовмян, Журн. Структ. Химии 22 (1981) 111.
19. E. König, Magnetic Properties of Coordination and Organometallic Transition Metal Compounds, Springer-Verlag, Berlin, 1966.
20. M. Krupski, Rev. Sci. Instr. 67 (1996) 2894.

SPIN TRANSITIONS IN Fe(III) COMPLEXES

Yu.V. Yablokov¹, V.V. Zelentsov², M.A. Augustyniak-Yablokov¹, A. Krupska¹,
E. Mrozinski³

¹ *Institute of Molecular Physics PAS, Poznan, Poland*

² *Moscow Physical-Technical Institute, Dolgoprudnyi, Russia*

³ *Faculty of Chemistry, University of Wroclaw, Wroclaw, Poland*

The process of the high spin (HS) $\leftrightarrow$ low spin (LS) transition is studied in the polycrystals of the Fe(III) thiosemicarbazones, $M[Fe(Th-R-Sa)_2]$, with $M, R = Na, H$ (**A**); $NH_4, 5-Br$ (**B**) и $K, 5-Br$ (**C**) by the EPR method at atmospheric and hydrostatic pressure up to 600 MPa in the 80 - 400 K temperature range. The $\chi(T)$ and μ_{eff} were also measured for $T = 1.8 - 400$ K. Spin transition (ST) in **A** is a continued one: μ_{eff} changes from $5.9 \mu_B$ at 330 K up to $5.7 \mu_B$ at 50 K whereupon changes sharply to $3.4 \mu_B$ at 1.8 K. The analysis of the EPR line width ΔB has shown its exchange origin. LS complexes (LSC) are not statistically distributed among the HS ones (HSC), but are gathered in a limited regions of structure – domains. The density of the LSC in domains increases with the T lowering. (ΔB changes from $\sim 70 - 80$ mT at 200 K down to ~ 20 mT at 80 K). The line width ΔB sharply changes in the ST process at the two T intervals (240 – 236 K and 195 – 191 K), pointing to the redistribution of the LSC in domains. Within 195 – 191 K this phenomenon is accompanied by the sharp increase of the LSC quantity.

The application of the external pressure P stimulates ST, however the character of the (HS) $\leftrightarrow$ (LS) process depends on T . At $T > 240$ K LSC are not distributed accidentally, nevertheless their density at the regions of gathering is not high ($\Delta B > 50$ mT). The application of P below 236 K destroys domains partly, a number of the LSC returns to the HS state. The domains reorganization occurs at increasingly high P values at the T lowering.

ST takes place in **B** at the temperature interval 100 – 250 K (in interval 150 - 200 K it occurs more rapidly). It occurs through the domain formation as well but, contrary to the **A** case, the density of the LSC in domains grows very quickly. Already at the beginning of the EPR registration at P_{atm} $\Delta B(240\text{ K}) \sim 21$ mT; $\Delta B(170\text{ K}) \approx 13.7$ mT. In the T interval corresponding to the equal LSC and HSC contents, at $T \sim 140$ K, the abrupt transition from the separate existence of the LSC and HSC phases to their distributed state takes place. The pressure leads to the ST as well as the temperature does. About half of the complexes passes to the new spin state at $P_{max} = 600$ MPa. The state of the crystal is a transitional one at this P region. It shifts to the lower pressures at the temperature lowering. ST in **C** occurs in the 360 – 250 K T range. Its study allows to understand better the role of T and P at the ST process.

The processes of the domain formation and destruction show a definite hysteresis. The increase of the LSC density at the pre-domain state is defined by the pair correlations of the LS complexes. The cooperative effects lead to the sharp transformation of domains. The features of the self-regulation are inherited to the process of the transition of the crystal with the LS complex domains to the state equilibrium at given T and P .

СПИСОК НАУЧНЫХ РАБОТ Б.И. КОЧЕЛАЕВА

1. Б.И. Кочелаев. К теории спин-решеточной релаксации ядерных спинов в ионных кристаллах. ЖЭТФ, **37**, 242 (1959).
2. Б.И. Кочелаев. Продольная релаксация ядерных спинов при сверхнизких температурах в парамагнитном кристалле. ЖЭТФ, **38**, 999 (1960).
3. Б.И. Кочелаев. К теории спин-решеточной релаксации парамагнитных ионов в комплексах. ФТТ, **2**, 1423 (1960).
4. Б.И. Кочелаев. Влияние дефектов кристалла на спин-решеточную релаксацию. ДАН, **131**, 105 (1960).
5. Б.И. Кочелаев. К теории спин-решеточной релаксации ядерных спинов, окруженных октаэдрическим комплексом. Оптика и спектроскопия, **9**, 257 (1960).
6. Б.И. Кочелаев. Спин-решеточная релаксация парамагнитных ионов в комплексах XY_6 . В сб. Парамагнитный резонанс. Доклады на совещании по парамагнитному резонансу, Изд-во Казанского университета, с. 74-78 (1960)
7. Б.И. Кочелаев. Некоторые вопросы теории спин-решеточного взаимодействия в ионных кристаллах. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Харьковский государственный университет, 1960.
8. Б.И. Кочелаев. Релаксационное поглощение звука в парамагнетике. ЖЭТФ, **41**, 423 (1961).
9. С.А. Альтшулер, Б.И. Кочелаев, А.М. Леушин. Парамагнитное поглощение звука (обзор). УФН, **75**, 459 (1961).
10. Б.И. Кочелаев. Резонансное вращение плоскости поляризации звука в парамагнетике. ФТТ, **4**, 1559 (1962).
11. Л.К. Аминов, Б.И. Кочелаев. Влияние спин-фононного взаимодействия на спектр парамагнитного резонанса. ФТТ, **4**, 1604 (1962).
12. Л.К. Аминов, Б.И. Кочелаев. О спин-решеточном взаимодействии в кристаллах, содержащих выделенные парамагнитные комплексы. ФТТ, **4**, 3273 (1962).
13. Л.К. Аминов, Б.И. Кочелаев. Спин-спиновые взаимодействия через поле фононов в парамагнитных кристаллах. ЖЭТФ, **42**, 1303 (1962).
14. Н.Г. Колоскова, Б.И. Кочелаев, У.Х. Копвиллем. Нерезонансное поглощение ультразвука спин-системой. Физич. проблемы спектроск. Изд-во АН СССР., **11**, 91 (1963).
15. Б.И. Кочелаев. Антиферромагнетизм, обусловленный спин-фононным взаимодействием. ЖЭТФ, **44**, 235 (1963).
16. Б.И. Кочелаев. К теории некоторых явлений в парамагнетике, обусловленных спин-фононным взаимодействием. Сб. "Парамагнитный резонанс", Изд-во Казанского ун-та, с. 78 (1964).

17. B.I. Kochelaev. Spin coupling by the conduction electrons. *J. Phys. Chem. Solids*, **25**, 1483 (1964).
18. Б.И. Кочелаев. Спин-спиновые взаимодействия через электроны проводимости в полупроводниках. *ФТТ*, **7**, 2859 (1965).
19. С.А. Альтшулер, Б.И. Кочелаев. Сдвиг компонент тонкой структуры релеевской линии рассеяния света в парамагнетике. *ЖЭТФ*, **49**, 862 (1965).
20. Б.И. Кочелаев. Сверхтонкая структура релеевской линии рассеяния света в парамагнетике. *ДАН*, **166**, 833 (1966).
21. М.И. Каганов, Б.И. Кочелаев, В.Г. Песчанский. XII Всесоюзное совещание по физике низких температур. *УФН*, **89**, с.719 (1966).
22. Б.И. Кочелаев. Спектр парамагнитного резонанса с учетом электронно-колебательного взаимодействия в случае сильной связи. *ФТТ*, **9**, 2180 (1967).
23. Н.Г. Колоскова, Б.И. Кочелаев. Спектр парамагнитного резонанса с учетом электронно-колебательного взаимодействия в случае слабой связи *ФТТ*, **9**, 2948 (1967).
24. Б.И. Кочелаев, Ш.Ш. Башкиров, Э.К. Садыков. О спин-фононном взаимодействии ядер парамагнитных ионов. *ФТТ*, **9**, 3238 (1967).
25. Б.И. Кочелаев. Теория динамических эффектов в парамагнитных кристаллах. Диссертация на соискание ученой степени доктора физико-математических наук. Казанский государственный университет, 1967.
26. М.Н. Алиев, Б.И. Кочелаев. Спин-решеточные колебания в парамагнетике. *Изв. ВУЗов, Физика*, **2**, 7 (1968).
27. Н.Г. Колоскова, Б.И. Кочелаев. Теория спинового эха в локальных полях. *Сб. "Парамагнитный резонанс"*, в. 4, с. 29. Изд-во Казанск. ун-та, 1968.
28. S.A. Al'tshuler, B.I. Kochelaev. Some peculiarities of Rayleigh light scattering in paramagnetic crystals. In book "Polarisation, Matiere et Rayonnement" volume jubilaire en l'honneur d'A.Kastler, Presses Universitaires de France, Paris, 1969, pp 17-25.
29. Б.И. Кочелаев, Ш.Ш. Башкиров, Э.К. Садыков К теории акустического резонанса на ядрах парамагнитных ионов группы железа. *Изв. ВУЗов, Физика*, **4**, 92 (1969).
30. M.N. Aliev, B.I. Kochelaev. The statistical theory of nuclear magnetic resonance line shape in crystals with paramagnetic impurities. *Phys. Stat. Sol.*, **35**, 71 (1969).
31. Н.М. Аминов, Б.И. Кочелаев. Квазилокальные колебания решетки, индуцированные электронными переходами. *ФТТ*, **11**, 2906 (1969).
32. С.А. Альтшулер, Б.И. Кочелаев. Методы исследования спин-фононного взаимодействия в парамагнетиках. *Изв. АН СССР, сер.физ.*, **35**, 883 (1971).
33. С.А. Альтшулер, Р.М. Валишев, Б.И. Кочелаев, А.Х. Хасанов Обнаружение лавины фононов с помощью мандельштам-бриллюэновского

- рассеяния света в условиях импульсного насыщения ЭПР. Письма в ЖЭТФ, **13**, 535 (1971).
34. B.I. Kochelaev. Bose-Einstein Condensation of Magnons. Proc. XVI Congress AMPERE, Bucharest, 1971, p. 131.
 35. Б.И. Кочелаев. Распространение флуктуаций намагнитченности в твердом парамагнетике. Сб. "Парамагнитный резонанс 1944-1969", с. 229. Наука, Москва, 1971.
 36. Б.И. Кочелаев. Исследования фононной системы по манделъштам-бриллюэновскому рассеянию света в условиях насыщения парамагнитного резонанса. ЖЭТФ, **62**, 630 (1972).
 37. Н.М. Аминов, Б.И. Кочелаев. О возможности возникновения "фотонной лавины" при насыщении крыла линии ЭПР. Письма в ЖЭТФ, **15**, 224 (1972).
 38. Б.И. Кочелаев, Р.Р. Нигматуллин. К теории насыщения ЭПР при низких температурах. ФТТ, **14**, 3413 (1972).
 39. Н.Е. Алексеевский, И.А. Гарифуллин, Б.И. Кочелаев, Э.Г. Харахашьян. ЭПР на локализованных магнитных моментах в сверхпроводнике. Письма в ЖЭТФ, **18**, 323 (1973).
 40. Р.Г. Деминов, Б.И. Кочелаев. Стационарное вынужденное манделъштам-бриллюэновское рассеяние света в парамагнетике в условиях акустического парамагнитного резонанса. ЖЭТФ, **66**, 907 (1974).
 41. Р.Г. Деминов, Б.И. Кочелаев. Фотонная лавина в молекулярных кристаллах. ФТТ, **16**, 3703 (1974).
 42. Р.М. Валишев, Б.И. Кочелаев, А.Х. Хасанов. Усиление электромагнитных колебаний, обусловленное неравновесностью диполь-дипольного резервуара парамагнетика. ФТТ, **16**, 3724 (1974).
 43. Н.Е. Алексеевский, И.А. Гарифуллин, Б.И. Кочелаев, Э.Г. Хаарашьян. Об упорядочении магнитных примесей в сверхпроводниках. Письма в ЖЭТФ, **24**, 540 (1976).
 44. Ю.Е. Котельников, Б.И. Кочелаев. Дипольная плазма в молекулярных кристаллах. ФТТ, **18**, 3578 (1976).
 45. С.А. Альтшулер, Р.М. Валишев, Р.Г. Деминов, Б.И. Кочелаев, А.Х. Хасанов. Манделъштам-бриллюэновское рассеяние света на горячих фононах в парамагнетиках. Акустический журнал, **22**, 764 (1976).
 46. Н.М. Галеева, Б.И. Кочелаев. Упругое взаимодействие магнитных центров в примесном парамагнетике. ФТТ, **19**, 1354 (1977).
 47. B.I. Kochelaev, Yu.E. Kotelnikov. On the Bose-Einstein condensation of excitons. Phys. Stat. Sol. (b), **81**, 747 (1977).
 48. Н.Е. Алексеевский, И.А. Гарифуллин, Б.И. Кочелаев, Э.Г. Харахашьян. Электронный парамагнитный резонанс на локализованных магнитных состояниях в сверхпроводящей системе La-Er. ЖЭТФ, **72**, 1523 (1977).

49. Б.И. Кочелаев, Р.Х. Сабилов, Г.Г. Халиуллин. Ширина линии магнитного резонанса в разбавленном парамагнетике. ФТТ, **19**, 152 (1977).
50. А.А. Косов, Б.И. Кочелаев. Электронный парамагнитный резонанс на локализованных магнитных моментах в бесщелевых сверхпроводниках. ЖЭТФ, **74**, 14 (1978).
51. Е.С. Гринберг, Р.Г. Деминов, Б.И. Кочелаев. Теория фононной лавины, вызванной неравновесностью дипольного резервуара. ФТТ, **20**, 363 (1978).
52. С.А. Альтшулер, А.В. Дуглав, Б.И. Кочелаев, А.Х. Хасанов. Усиление нерезонансного поглощения ультразвука в парамагнетике, обусловленное неравновесным состоянием диполь-дипольного резервуара. Proc. XX Congress AMPERE, Tallin, 1978, p. 238.
53. Ю.Е. Котельников, Б.И. Кочелаев. Рассеяние света на колебаниях дипольной плазмы. ФТТ, **20**, 2036 (1978).
54. Б.И. Кочелаев, А.А. Косов. Динамика локализованных магнитных моментов в бесщелевых сверхпроводниках. В сб. "Парамагнитный резонанс", в. 14, с. 3. Изд-во Казанского ун-та, 1978.
55. Б.И. Кочелаев, А.Х. Хасанов. Лавина фононов, индуцированная неравновесностью дипольного резервуара. В кн. "Проблемы магнитного резонанса", М., Наука, 1978, с. 111.
56. B.I. Kochelaev, N.G. Koloskova, A.A. Kosov. Exchange narrowing of the EPR line in superconductors. Proc. XX Congress AMPERE, Tallinn, 1978, p. 209.
57. Ф.Л. Аухадеев, В.А. Гревцев, Б.И. Кочелаев, Б.З. Малкин, М.А. Теплов. Исследование магнитоакустических колебаний в парамагнетике LiErF₄. В материалах X Всесоюзной конференции "Акустическая спектроскопия, квантовая акустика, акустоэлектроника", Изд-во ФАН, 1978, с. 27.
58. Б.И. Кочелаев, Л.Р. Тагиров, М.Г. Хусаинов. Пространственная дисперсия спиновой восприимчивости электронов проводимости в сверхпроводнике. ЖЭТФ, **76**, 578 (1979).
59. Н.М. Галеева, Б.И. Кочелаев, Н.Ф. Фаткуллин. К теории спин-решеточной релаксации, вызванной локализованными поворотами кристаллической решетки. ФТТ, **22**, 2333 (1980).
60. А.В. Дуглав, Н.Г. Колоскова, Б.И. Кочелаев, А.Х. Хасанов. Резонансное парамагнитное поглощение звука в условиях диполь-дипольных взаимодействий. ЖЭТФ, **79**, 2367 (1980).
61. T.S. Altshuler, I.A. Garifullin, B.I. Kochelaev, E.G. Kharakhshyan, G.G. Khaliullin. Korringa Relaxation Rate of Exchange-Coupled Localised Moments in Metals. Phys.Stat. Sol. (b), **98**, K85 (1980).
62. Б.И. Кочелаев, М.Г. Хусаинов. Форма линии ЭПР в сверхпроводнике второго рода. ЖЭТФ, **80**, 1480 (1981).

63. Е.С. Гринберг, А.В. Дуглав, Н.Г. Колоскова, Б.И. Кочелаев. О насыщении диполь-дипольного резервуара нерезонансным ультразвуком. ЖЭТФ, **80**, 2356 (1981).
64. Е.С. Гринберг, Б.И. Кочелаев, Г.Г. Халиуллин. Обменное сужение линии магнитного резонанса в разбавленных сверхпроводниках. ФТТ, **23**, 397 (1981).
65. Б.И. Кочелаев, М.Г. Хусаинов. Форма линии парамагнитного резонанса в бесщелевых сверхпроводниках II рода. ФТТ, **23**, 1237 (1981).
66. Е.С. Гринберг, А.В. Дуглав, Н.Г. Колоскова, Б.И. Кочелаев. Прямое поглощение низкочастотного ультразвука диполь-дипольным резервуаром и эффекты насыщения. Материалы XI Всесоюзной конференции по акустоэлектронике и квантовой акустике, Изд-во «Дониш», Душанбе, 1981, с. 284.
67. Е.Г. Гринберг, А.В. Дуглав, Б.И. Кочелаев. Поглощение энергии электромагнитного и звукового полей низкой частоты некрамерсовыми ионами Ho^{3+} в монокристалле. ЖЭТФ, **82**, 888 (1982).
68. Б.И. Кочелаев, В.Ф. Фролов. О возможности наблюдения акустического спинового резонанса электронов проводимости в металлах. Письма в ЖЭТФ, **35**, 214 (1982).
69. С.А. Альтшулер, Б.И. Кочелаев, Ю.Г. Назаров, А.Х. Хасанов. Исследование ЭПР, спиновой и фононной кинетики в ионных парамагнитных кристаллах при помощи мандельштам-бриллюэновского и комбинированного рассеяния света. Изв. АН СССР, сер. физ. **46**, 418 (1982).
70. Н.Е. Алексеевский, И.А. Гарифуллин, Б.И. Кочелаев, Г.Г. Халиуллин, Э.Г. Харахашьян. Электронный парамагнитный резонанс в сверхпроводящем соединении LaGdIn . ЖЭТФ, **82**, 1979 (1982).
71. Б.И. Кочелаев, Ю.Г. Назаров, А.Х. Хасанов. Сверхрассеяние света на спиновой системе парамагнитных ионов. Письма в ЖЭТФ, **33**, 475 (1983).
72. А.А. Антипин, Б.И. Кочелаев, В.И. Шленкин. Электронная спин-решеточная и фазовая релаксация в фосфатных стеклах, активированных иттербием. Письма в ЖЭТФ, **39**, 155 (1984).
73. Б.И. Кочелаев, В.Ф. Фролов. Об акустическом спиновом резонансе в металлах с парамагнитными примесями. ФТТ, **26**, 1228 (1984).
74. Б.И. Кочелаев, Б.М. Хасанов. Возможности наблюдения акустического парамагнитного резонанса в жидких кристаллах. ФТТ, **26**, 3046 (1984).
75. G.G. Khaliullin, B.I. Kochelaev. Spin-Wave Excitations of Paramagnetic Impurities in Superconductors. Phys.Lett., **106A**, 318 (1984).
76. B.I. Kochelaev. Magnetic resonance and relaxation at very low temperatures. S.A. Al'tshuler memorial lecture. In: XXIIInd Congress AMPERE on magnetic resonance and related phenomena proceedings, eds. K.A. Müller, R. Kind, J. Roos, University Zürich, Switzerland, 1984, p. 2-7.

77. А.А. Антипин, Б.И. Кочелаев, С.Б. Орлинский, Д.А. Фушман, В.И. Шленкин. Проявление двухуровневых систем в электронной фазовой релаксации в фосфатных стеклах при низких температурах. ЖЭТФ, **88**, 1001 (1985).
78. B.I. Kochelaev, L.R. Tagirov. Exchange-Field Narrowing Process for the Inhomogeneously Broadened EPR in Superconductors. Solid State Commun., **53**, 961 (1985).
79. Б.И. Кочелаев, Д.А. Фушман. Поглощение звука в стеклах, обусловленное взаимодействием двухуровневых систем. ФТТ, **27**, 2779 (1985).
80. Б.И. Кочелаев, Л.Р. Тагиров. Сужение линии ЭПР обменным полем в сверхпроводнике. ЖЭТФ, **89**, 1358 (1985).
81. Б.И. Кочелаев, Ю.Н. Прошин. Влияние стохастического магнитного пробоя на парамагнитный резонанс электронов проводимости в чистых металлах (Zn, Mg). ФТТ, **27**, 265 (1985).
82. Б.И. Кочелаев, Ю.Г. Назаров, А.Х. Хасанов, Д.В. Чистяков. Спин-комбинационное сверхрассеяние света в условиях нагрева резонансных фононов. Изв.АН СССР, сер.физ., **50**, 213 (1986).
83. М.В. Еремин, А.Ю. Завидонов, Б.И. Кочелаев. Взаимодействие примесных кристаллических центров в анизотропных упругих средах. ЖЭТФ, **90**, 537 (1986).
84. Б.И. Кочелаев, Л.Р. Тагиров. Сужение неоднородно и дипольно уширенных линий ЭПР обменным полем в сверхпроводнике. Радиоспектроскопия, Пермь, с. 69, 1987.
85. Н.Е. Алексеевский, И.А. Гарифуллин, Н.Н. Гарифьянов, Б.И. Кочелаев, А.В. Митин, В.И. Нижанковский, Л.Р. Тагиров, Е.П. Хлыбов. ЭПР в системе Y-Gd-Ba-Cu-O. Письма в ЖЭТФ, **46**, 292 (1987).
86. М.В. Еремин, Б.И. Кочелаев, А.Ю. Завидонов. Взаимодействие ионов Се через поле фононов в этилсульфатах. ФТТ, **29**, 2490 (1987).
87. S.A. Altshuler, A.Kh. Khasanov, B.I. Kochelaev. Studies of spin systems by means of light scattering in paramagnetic crystals. In "Spectroscopy of solids containins Rave Earth Ions", ed. A.A. Kaplyanskii and R.M. Macfarlane, ch. 10, p. 607. North-Holland, Amsterdam, 1987.
88. Н.Е. Алексеевский, И.А. Гарифуллин, Н.Н. Гарифьянов, Б.И. Кочелаев, В.Н. Нижанковский, А.В. Митин, Л.Р. Тагиров, Е.П. Хлыбов. ЭПР на локализованных моментах в сверхпроводящих металлооксидах. ЖЭТФ, **94**, 276 (1988).
89. Н.Е. Алексеевский, И.А. Гарифуллин, Н.Н. Гарифьянов, Б.И. Кочелаев, В.Н. Нижанковский, А.В. Митин, Л.Р. Тагиров, Е.П. Хлыбов. Электронные свойства системы YBaCuO. Письма в ЖЭТФ, **48**, 36 (1988).
90. Н.Е. Алексеевский, И.А. Гарифуллин, Н.Н. Гарифьянов, Б.И. Кочелаев, В.Н. Нижанковский, А.В. Митин, Л.Р. Тагиров. Парамагнитные центры

Сu в образцах YBaCuO с различной степенью орторомбичности. ФТТ, **30**, 1568 (1988).

91. Б.И. Кочелаев, О.В. Недопёкин. Спиновое комбинационное рассеяние света на парамагнитных ионах. ФТТ, **30**, 2476 (1988).
92. Б.И. Кочелаев, Д.А. Таюрский. Спиновая кинетика в парамагнетиках при низких температурах. ФТТ, **30**, 3075 (1988).
93. B.I. Kochelaev, N.I. Alekseevskii, I.A. Garifullin, N.N. Garifyanov, A.V. Mitin, V.I. Nizhankovskii, L.R. Tagirov, G.G. Khaliullin, E.P. Khlybov. EPR of paramagnetic centers in high temperature superconductors. Proc. 24th AMPERE Congress on Magnetic resonance and related phenomena, 1989, pp. 429-446.
94. А.В. Митин, В.Н. Нижанковский, И.А. Гарифуллин, Н.Н. Гарифьянов, Б.И. Кочелаев, Г.Г. Халиуллин, Л.Р. Тагиров. EPR study of polycrystal line superconductors with YBaCuO structure. J. Low Temp. Phys., **77**, 1/2, 87 (1989).
95. Б.И. Кочелаев, А.Е. Соловьев. Учет продольных флуктуаций в резонансном рассеянии фононов с двухуровневыми системами. ФТТ, **32**, 743 (1990).
96. B.I. Kochelaev, L.R. Tagirov. Modification of exchange interaction of localized moments via conduction electrons in superconductors and its manifestations. In "Resonances", a volume in honor of N. Bloembergen, ed. by V.D. Levenson *et al.*, World Scientific, p. 39 (1990).
97. B.I. Kochelaev, L.R. Tagirov, I.A. Garifullin, N.N. Garifyanov, G.G. Khaliullin, N.E. Alekseevskii, A.V. Mitin, V.I. Nizhankovskii, E.P. Khlybov. Single-crystal EPR study of high- T_c superconductor YBa₂Cu₃O_{7- δ} . Experimentelle Technik der Physik, **38**, 359 (1990).
98. Б.И. Кочелаев, Д.А. Таюрский. О спектре элементарных возбуждений в парамагнитных кристаллах с простой кубической решеткой. «Магнитный Резонанс-91», Материалы симпозиума, посвященного 80-летию С.А. Альтшулера, Казань, 1991, с. 39
99. Б.И. Кочелаев, Е.П. Шарин. Пространственное распределение магнитного поля вне тонкой анизотропной сверхпроводящей пластины. СФХТ, **5**, 1931 (1992).
100. Б.И. Кочелаев, Е.П. Шарин. Распределение локального магнитного поля вихревой решетки вблизи поверхности анизотропного сверхпроводника. СФХТ, **5**, 1982 (1992).
101. B.I. Kochelaev, L. Kan, B. Elschner, S. Elschner. Spin dynamics in La₂Sr_{2-x}CuO₄ doped with Mn as revealed by an EPR study. Phys. Rev. **B 49**, 13106 (1994).
102. B.I. Kochelaev. Spin Temperature and Non-Equilibrium Phonons. in "NMR and More", a volume in honor of ANATOLE ABRAGAM, ed. by M. Goldman and M. Porneuf, Les Editions de Physique Les Ulis, p. 277, 1994.
103. B.I. Kochelaev. Discovery of Electron Spin Resonance. In "Encyclopedia of Nuclear Magnetic Resonance", vol. 1, ed. by John Wiley & Sons, Ltd., 1995.

104. B.I. Kochelaev, J. Sichelschmidt, B. Elschner, and A. Loidl. EPR study of the dynamic spin susceptibility in heavily doped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+d}$. *Phys. Rev. B*, **51**, 9199 (1995).
105. B.I. Kochelaev, Yu.V. Yablokov. *The Beginning of Paramagnetic Resonance*. World Scientific, Singapore, Hong Kong, 176 pp, 1995.
106. Р.Г. Демин, Б.И. Кочелаев, Л.Р. Тагиров. Явление магнитного узкого горла в $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4+d}$ и его использование для изучения спиновой динамики CuO_2 -плоскостей. *ФТТ*, **38**, 2293 (1996).
107. Б.И. Кочелаев, Ю.Н. Прошин, С.Л. Царевский. Форма линии магнитного резонанса в сверхпроводниках второго рода с учетом скин-эффекта. *ФТТ*, **38**, 3220 (1996).
108. S.I. Belov, B.I. Kochelaev. Spin waves in Heisenberg two-dimensional antiferromagnets $S = 1/2$ with skyrmions. *Solid State Commun.*, **103**, 249 (1997).
109. J. Sichelschmidt, B. Elschner, B. Lemor, B. Kochelaev, and A. Loidl. Intrinsic EPR in LaSrCuO_4 : Manifestation of Three-Spin Polarons. *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 4274 (1997).
110. С.И. Белов, Б.И. Кочелаев. Элементарные спиновые возбуждения в гейзенберговском антиферромагнетике $S = 1/2$ со скирмионами. *ФТТ*, **39**, 574 (1997).
111. S.I. Belov, B.I. Kochelaev. Nuclear spin relaxation in two-dimensional Heisenberg antiferromagnet $S = 1/2$ with skyrmions. *Solid State Commun.*, **106**, 207 (1998).
112. B.I. Kochelaev. Spin-Phonon Interaction and the EPR Linewidth in La_2CuO_4 and Related Cuprates. *J. Supercond.* **12**, 53 (1999).
113. B. Elschner, B. Kochelaev, J. Sichelschmidt and A. Loidl. Intrinsic Electron Paramagnetic Resonance in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$: Manifestation of three Spin Polarons. *J. Supercond.* **12**, 57 (1999).
114. B.I. Kochelaev, A. Shengelaya, Guo-meng Zhao, H. Keller, K.A. Müller. EPR in $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$: Relaxation and bottleneck. *Phys. Rev. B* **61**, 5888 (2000).
115. С.И. Белов, Б.И. Кочелаев. Ширина линии электронного парамагнитного резонанса в двумерном гейзенберговском антиферромагнетике $S = 1/2$ со скирмионами. *ФТТ*, **42**, 499 (2000).
116. A. Shengelaya, H. Keller, K.A. Müller, B.I. Kochelaev, K. Conder. Tilting mode relaxation and oxygen isotope effect in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ studied by electron paramagnetic resonance. *J. Supercond. Incorporating Novel Magnetism*, **13**, 955 (2000).
117. S.I. Belov, B.I. Kochelaev. Skyrmions in 2D quantum Heisenberg antiferromagnet: static magnetic susceptibility. In: "Stripes and related phenomena", Kluwer Academic/ Plenum Publisher, New York, p. 349-354 (2000).

118. A. Shengelaya, H. Keller, K.A. Muller, B.I. Kochelaev, K. Conder. Tilting mode relaxation in the electron paramagnetic resonance of oxygen-isotope-substituted $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4\text{:Mn}^{2+}$. Phys. Rev. B, **63**, 144513 (2001).
119. Ch. Kegler, N. Büttigen, H.-A. Krug von Nidda, A. Krimmel, L. Svistov, B.I. Kochelaev, A. Loidl, A. Prokofiev, and W. Assmus. Magnetic resonance on LiCuVO_4 . Eur. Phys. J. B, **22**, 321-326 (2001).
120. M. Heinrich, H.-A. Krug von Nidda, A. Krimmel, A. Loidl, R.M. Eremina, A.D. Ineev, B.I. Kochelaev, A.V. Prokofiev, W. Assmus. Structural and magnetic properties of CuSb_2O_6 probed by ESR. Phys. Rev. B, **67**, 224418 (2003).
121. B.I. Kochelaev, A.M. Safina, A. Shengelaya, H. Keller, K.A. Muller, K. Conder. Three-Spin Polarons and their Elastic Interactions in Cuprates. Mod. Phys. Lett. B, **17**, 415 (2003).
122. B.I. Kochelaev, E.V. Shilova, J. Deisenhofer, H.-A. Krug von Nidda, A. Loidl, A.A. Mukhin, A.M. Balbashov. Phase Transitions and Spin Relaxation in $\text{La}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{MnO}_3$. Mod. Phys. Lett. B, **17**, 459 (2003).
123. S. Belov, B.I. Kochelaev. Magnetic Properties and Spin Kinetics of Two-Dimensional Heisenberg Antiferromagnets. Mod. Phys. Lett. B, **17**, 487 (2003).
124. J. Deisenhofer, B. I. Kochelaev, E. Shilova, A.M. Balbashov, A. Loidl, and H.-A. Krug von Nidda. Orbital order parameter in $\text{La}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{MnO}_3$ probed by electron spin resonance. Phys. Rev. B, **68**, 214427 (2003).
125. Б.И. Кочелаев, А.М. Сафина. Режим электронного узкого горла для парамагнитных примесей в металлах в случае анизотропного обменного взаимодействия. ФТТ, **46**, 224 (2004).

Список сокращений названий журналов

ДАН	Доклады АН СССР
ЖЭТФ	Журнал экспериментальной и теоретической физики
Изв. АН СССР	Известия АН СССР
Изв. ВУЗов	Известия ВУЗов
Письма в ЖЭТФ	Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики
СФХТ	Сверхпроводимость: Физика, Химия, Технология
УФН	Успехи физических наук
ФТТ	Физика твердого тела
Eur. Phys. J.	European Physical Journal
J. Low Temp. Phys.	Journal of Low Temperature Physics
J. Phys. Chem. Solids	Journal of Physics and Chemistry of Solids
J. Supercond.	Journal of Superconductivity
Mod. Phys. Lett.	Modern Physics Letters
Phys. Rev. Lett.	Physical Review Letters
Phys. Rev.	Physical Review
Phys. Stat. Sol.	Physica Status Solidi
Phys.Lett.	Physics Letters
Solid State Commun.	Solid State Communications

СПИСОК УЧЕНИКОВ КОЧЕЛАЕВА Б.И.

(годы защиты кандидатской и докторской диссертаций указаны в скобках)

1. Алиев М.Н. (1969,1989)
2. Царевский С.Л. (1971, 1994)
3. Аминов Н.М. (1972)
4. Нигматуллин Р.Р. (1974, 1993)
5. Деминов Р.Г. (1976)
6. Сабилов Р.Х. (1977)
7. Котельников Ю.Е. (1978)
8. Косов А.А. (1979, 1993)
9. Галеева Н.М. (1980)
10. Тагиров Л.Р. (1981, 1996)
11. Гринберг Е.С. (1981)
12. Хусаинов М.Г. (1981, 1997)
13. Фазлеев Н.Г. (1981)
14. Фролов В.Ф. (1984)
15. Назаров Ю.Г. (1984)
16. Фушман Д.А. (1985)
17. Трутнев К.Ф. (1987)
18. Хасанов Б.М. (1987)
19. Прошин Ю.Н. (1988,1995)
20. Таюрский Д.А. (1989, 2001)
21. Миронов Г.И. (1989)
22. Соловьев А.Е. (1990)
23. Чистяков Д.В. (1991)
24. Усеинов Н.Х. (1992)
25. Недопекин О.В. (1992)
26. Шарин Е.П. (1993)
27. Белов С.И. (1997)
28. Еремин И.М. (1999)
29. Шилова Е.В.
30. Инеев А.Д.
31. Сафина А.М.

СОДЕРЖАНИЕ

Предисловие	5
<i>М.И. Каганов</i> Издавека	9
<i>В.А. Ацаркин, В.В. Демидов, Д.Г. Готовцев, Н.Е. Ногонова</i> Влияние диамагнитного разбавления на спиновую динамику в манганитах	13
<i>А.П. Ахтанин, А.А. Косов</i> Анализ изотопического эффекта в сильнокоррелированных сверхпроводниках в рамках двухорбитальной модели Андерсона-Хаббарда	29
<i>С. И. Белов</i> Элементарные возбуждения в классическом двумерном ферромагнетике	37
<i>И. Еремин, М.В. Еремин</i> Поляронные эффекты в расширенной модели Хаббарда	41
<i>Н.Ф. Фаткуллин, Р. Киммих</i> К теории вязкоупругости полимерных расплавов	61
<i>Н.Г. Фазлеев, Дж.Л. Фрай, Дж.М. Рейчек</i> Интегралы по траекториям Фейнмана-Каца и возбужденные состояния квантовых систем	67
<i>И.А. Гарифуллин, Н.Н. Гарифьянов, Д.А. Тихонов, М.З. Фаттахов, К. Чейс-Брёл, К. Вестерхольт, Х. Цабель</i> Изменение магнитного состояния в эпитаксиальных двухслойных системах $V/Pd_{1-x}Fe_x$ под воздействием сверхпроводимости	87
<i>Ю.А. Изюмов, Н.И. Чащин, Д.С. Алексеев</i> Метод производящего функционала для модели Хаббарда	101
<i>М.И. Каганов, А.В. Чубуков</i> Ферми-жидкость и сильные корреляции	127
<i>Б.М. Хасанов</i> Изотропная фаза нематиков в пористой среде	161
<i>М.Г. Хусаинов</i> Неоднородные сверхпроводящие состояния и процессы переброса в наноструктурах магнетик-сверхпроводник	173

<i>А.А. Кокин, К.А. Валиев</i> Ансамблевые ЯМР квантовые компьютеры на кремнии	203
<i>А.В. Минкин, С.Л. Царевский</i> Магнитное поле сверхпроводников II рода в модели вихря с нормальной сердцевинной конечного радиуса	225
<i>Г.И. Миронов</i> Решение $B-U-V$ модели Хаббарда в приближении статических флуктуаций	235
<i>Г.А. Круг фон Нидда, Г. Крушель, А. Лойдл, Б. Элинер</i> Спиновая динамика в $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ с примесными ионами Fe: исследования методом ЭПР	257
<i>Р.Р. Нигматуллин, А. Лё Мэоте</i> О природе необратимости в линейных системах	271
<i>Ю.Н. Прошин</i> Четырехслойные наноструктуры ферромагнетик-сверхпровод- ник: критические температуры и управляющие устройства	295
<i>А. Шенгеляя, М. Бруун, К.А. Мюллер, А. Сафина, К. Цондер</i> Микроскопическое фазовое расслоение и два типа квазичастиц, обнаруженные методом электронного парамагнитного резонанса в слабо допированном $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	313
<i>Л.Р. Тагиров, Б.П. Водопьянов</i> Теория контактов сверхпроводник-сильный ферромагнетик	323
<i>Д.А. Таюрский, К. Мацумото</i> О распространении звука в аэрогелях кремнезема, наполненных нормальным и сверхтекучим гелием	343
<i>Г.Б. Тейтельбаум</i> Различные режимы флуктуаций в фазовом расслоении сверхпроводящих купратов	355
<i>Ю.В. Яблоков, В.В. Зеленцов, М.А. Аугустыняк-Яблокова,</i> <i>А. Крупска, Е. Мрозински</i> О спиновых переходах в комплексах Fe(III)	367
Список научных трудов Б.И. Кочелаева	389
Ученики Б.И. Кочелаева	399
Содержание	400

CONTENTS

From editors	5
<i>M.I. Kaganov</i>	
From far away	9
<i>V.A. Atsarkin, V.V. Demidov, D.G. Gotovtsev, N.E. Noginova</i>	
Effect of diamagnetic dilution on spin dynamics in manganites	13
<i>A.P. Akhtanin, A.A. Kosov</i>	
The isotopic effect in highly correlated superconductors in the Anderson-Hubbard two-orbital model	29
<i>S.I. Belov</i>	
Elementary excitations in two-dimensional classical ferromagnet	37
<i>I. Eremin, M.V. Eremin</i>	
Polaron effects in extended Hubbard model	41
<i>N.F. Fatkullin, R. Kimmich</i>	
On the viscoelasticity theory of polymer melts	61
<i>N.G. Fazleev, J.L. Fry, J.M. Rejcek</i>	
Feynman-Kac path integrals and excited states of quantum systems	67
<i>I.A. Garifullin, N.N. Garif'yanov, D.A. Tikhonov, M.Z. Fattakhov, K. Theis-Bröhl, K. Westerholt, H. Zabel</i>	
Transformation of magnetic state under the influence of superconductivity in epitaxial V/Pd _{1-x} Fe _x bilayers	87
<i>Yu.A. Izyumov, N.I. Chatshin, D.S. Alekseev</i>	
Generating functional approach to the Hubbard model	101
<i>M.I. Kaganov, A.V. Chubukov</i>	
Fermi liquid and strong correlations	127
<i>B.M. Khasanov</i>	
Isotropic phase of nematics in porous media	161
<i>M.G. Khusainov</i>	
Nonuniform superconducting states and Umklapp processes in ferromagnet–superconductor nanostructures	173
<i>A.A. Kokin, K.A. Valiev</i>	
Ensemble silicon-based NMR quantum computers	203

<i>A.V. Minkin, S.I. Tsarevskii</i> Magnetic field of type II superconductors in the normal flux core model	225
<i>G.I. Mironov</i> The investigation of the B - U - V Hubbard model in the static fluctuation approximation	235
<i>H.-A. Krug von Nidda, G. Kruschel, A. Loidl, B. Elschner</i> Spin dynamics in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ doped with Fe: An ESR study	257
<i>R.R. Nigmatullin, A. Le Mehaute</i> To the nature of irreversibility in linear systems	271
<i>Yu.N. Proshin</i> Four-layered ferromagnet-superconductor nanostructures: critical temperatures and control devices	295
<i>A. Shengelaya, M. Bruun, K.A. Müller, A. Safina, K. Conder</i> Microscopic phase separation and two types of quasiparticles in lightly doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ observed by electron paramagnetic resonance	313
<i>L.R. Tagirov, B.P. Vodopyanov</i> Theory of superconductor - strong ferromagnet contacts	323
<i>D.A. Tayurskii, K. Matsumoto</i> On the sound propagation in silica aerogels filled in by normal and superfluid helium	343
<i>G.B. Teitel'baum</i> Different regimes of stripe fluctuations in the superconducting cuprates	355
<i>Yu.V. Yablokov, V.V. Zelentsov, M.A. Augustyniak-Yablokov, A. Krupska, E. Mrozinski</i> Spin transitions in Fe(III) complexes	367
List of publications by B.I. Kochelaev	389
Pupils of B.I. Kochelaev	399
Contents	402

АКТУАЛЬНЫЕ ПРОБЛЕМЫ ФИЗИКИ КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД

Корректурa авторов

Изд. лиц. серия ИД №04973 от 04.06.2001 г.
Подписано в печать 05.04.2004. Бумага офсетная.
Гарнитура «Таймс». Формат 62х94_{1/16}. Усл.печ.л. 25,5.

Уч.изд.л. 25,75. Печать офсетная.
Тираж 165 экз. Заказ 1-05-04/04.
Издательство ЗАО «Новое знание».
320043, г.Казань, ул.Зеленая, д.1.

Отпечатано в типографии ООО "Скай-С".
420008, г.Казань, ул.Кремлевская, д.16а, к.010.
Телефон: (8432) 36-90-16

ISBN 5-89347-221-7

