Math-Net.Ru

Общероссийский математический портал

Г. В. Парадеженко, Н. Б. Мельников, Б. И. Резер, Фактор Дебая-Валлера в рассеянии нейтронов ферромагнитными металлами, *ТМФ*, 2018, том 195, номер 1, 91–104

DOI: <https://doi.org/10.4213/tmf9374>

Использование Общероссийского математического портала Math-Net.Ru подразумевает, что вы прочитали и согласны с пользовательским соглашением <http://www.mathnet.ru/rus/agreement>

Параметры загрузки:

IP: 54.205.225.156

26 апреля 2023 г., 06:51:55

© 2018 г. Г. В. Парадеженко*, Н. Б. Мельников*, Б. И. Резер†

ФАКТОР ДЕБАЯ–ВАЛЛЕРА В РАССЕЯНИИ НЕЙТРОНОВ ФЕРРОМАГНИТНЫМИ МЕТАЛЛАМИ

Получено выражение для сечения рассеяния нейтронов в случае произвольного взаимодействия нейтрона с кристаллом. Дан краткий и простой вывод формулы для фактора Дебая–Валлера как функции вектора рассеяния и температуры. Для ферромагнитных металлов выше температуры Кюри получена оценка фактора Дебая–Валлера в диапазоне значений вектора рассеяния, характерных для эксперимента по поляризованному магнитному рассеянию нейтронов. На примере железа проведено сравнение результатов гармонического и ангармонического приближений.

Ключевые слова: рассеяние нейтронов, колебания решетки, фактор Дебая–Валлера, корреляция спиновой плотности, ферромагнитные металлы.

DOI: <https://doi.org/10.4213/tmf9374>

1. ВВЕДЕНИЕ

Эксперимент по рассеянию нейтронов используется для исследования ближнего магнитного порядка в металлах, который описывается коррелятором спиновой плотности (см., например, монографии [1]–[3]). Однако в эксперименте измеряется не сам коррелятор, а его фурье-образ. Непосредственное восстановление коррелятора лишь на основе данных эксперимента неустойчиво по отношению к погрешностям измерений (подробнее см. работу [4]). Интерпретация эксперимента по поляризованному магнитному рассеянию нейтронов в рамках теории спиновых волн дает большую (примерно 15–20 Å) область ближнего порядка в ферромагнитных металлах в парамагнитной области [5], но является спорной (см., например, [6], [7]).

Работа выполнена в рамках государственного задания ФАНО России (тема “Электрон” № 01201463326) при частичной поддержке УрО РАН (проект № 15-8-2-10).

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, Москва, Россия.
E-mail: gparadezhenko@cs.msu.su, melnikov@cs.msu.su

†Институт физики металлов им. М. Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, Россия.
E-mail: reser@imp.uran.ru

В рамках динамической теории спиновых флуктуаций (ДТСФ) [8] коррелятор спиновой плотности и его фурье-образ удается вычислить явно при различных температурах [9]–[11]. В наших работах [4], [10], [11] показано, что область ближнего порядка сравнительно мала (составляет несколько $\text{\AA}$), а расчеты фурье-образа коррелятора хорошо согласуются с экспериментом по поляризованному рассеянию нейтронов в парамагнитной области [5].

Связь между сечением магнитного рассеяния нейтронов и коррелятором спиновой плотности была установлена в работе [12]. Выражение для сечения неполяризованного магнитного рассеяния для магнетиков с *коллективизированными* электронами было выведено в нашей работе [11]. Сечение рассеяния для произвольного взаимодействия нейтрона с кристаллом рассмотрено в книге [13], но среднее по спиновым состояниям нейтрона там вычислено только для потенциала взаимодействия спина нейтрона и спинов электронов. В настоящей работе использовано представление для потенциала общего вида, существенно упрощающее вычисление среднего по спиновым состояниям. Рассмотренный нами потенциал может описывать ядерное взаимодействие, а также взаимодействия между спином нейтрона и спином атома, орбитальным током и спином электрона.

Учет колебаний решетки приводит к поправочному множителю в формуле для сечения рассеяния. Множитель, отвечающий упругому рассеянию на фононах, называется фактором Дебая–Валлера (ФДВ). В гармоническом приближении выражение для ФДВ было получено отдельно для ядерного (см., например, книги [13], [14]) и магнитного [11] типов рассеяния. В настоящей работе предложен краткий и простой способ вычисления ФДВ в случае рассеяния произвольного типа. Каноническое среднее для экспонент от операторов, линейных по смещениям, вычисляется по формуле, полученной в работе [15]. Предложенный способ позволяет опустить громоздкое вычисление среднего квадрата смещения на узле, которое возникало в выражении для ФДВ в работах [14], [11]. Подобное вычисление необходимо лишь при учете одно- и многофононного вкладов, которые, как правило, не дают полезной информации [14].

ФДВ зависит от температуры и модуля вектора рассеяния. В экспериментах по исследованию магнитных свойств металлов характерный диапазон значений вектора рассеяния составляет от $0.1 \text{ \AA}^{-1}$ до $10 \text{ \AA}^{-1}$ [16]. В этом диапазоне при $T = 0$ ФДВ в металлах дает поправку в пределах 10% [17], и она заметно растет при конечных температурах. Так, в брэгговском рассеянии нейтронов для меди поправка за счет ФДВ при $T = 10 \text{ К}$ составляет около 2%, а при $T = 1000 \text{ К}$ – около 18% (см. книгу [14]). Однако теоретические оценки, как правило, относятся к конкретным значениям вектора рассеяния, а экспериментальные измерения ФДВ в литературе отсутствуют.

В настоящей работе ФДВ для ферромагнитных металлов вычислен как функция модуля вектора рассеяния и температуры. Исследована величина поправки за счет ФДВ в эксперименте по поляризованному рассеянию нейтронов ферромагнитными металлами выше температуры Кюри [5], [18], [19]. Полученные результаты имеют универсальный характер и могут быть использованы для анализа экспериментов по рассеянию нейтронов ферромагнитными металлами.

Вклад ангармонических колебаний в ФДВ был рассмотрен в работе [20], где на примере свинца было показано, что для комнатных температур он незначите-

лен. В настоящей работе проведено сравнение ФДВ в гармоническом приближении с результатами для железа [21], [22], полученными в рамках ангармонической теории [23]. Показано, что при температурах выше температуры Кюри и при больших значениях вектора рассеяния ангармонический вклад может быть заметным. Однако метод, предложенный в работе [20], требует громоздких вычислений, а его упрощения в значительной мере зависят от используемых приближений и параметров (см., например, статьи [23], [24]).

Изложение построено следующим образом. В разделе 2 получено выражение для ФДВ в нейтронном рассеянии на произвольном потенциале. В разделе 3 дана оценка ФДВ для ферромагнитных металлов в эксперименте по поляризованному магнитному рассеянию нейтронов в парамагнитной области. В разделе 4 суммированы полученные результаты.

2. ФДВ В РАССЕЯНИИ НЕЙТРОНОВ НА ПРОИЗВОЛЬНОМ ПОТЕНЦИАЛЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

2.1. Дифференциальное сечение в борновском приближении. Количественной характеристикой процесса рассеяния является дважды дифференциальное сечение рассеяния (см., например, [14])

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{1}{\Phi d\Omega' dE_{k'}} \left(\begin{array}{c} \text{число нейтронов, рассеянных в единицу времени} \\ \text{в телесный угол } d\Omega', \text{ с энергией} \\ \text{в конечном состоянии между } E_{k'} \text{ и } E_{k'} + dE_{k'} \end{array} \right), \quad (1)$$

где Φ – плотность потока падающих нейтронов, которая определяется как число нейтронов, пролетающих через единицу площади в единицу времени (здесь и далее штрихом мы обозначаем величины после рассеяния). Число нейтронов в числителе выражения (1) равно $w_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'} dN(E_{k'})$, где $w_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'} = dP_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'}(t)/dt$ (здесь $P_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'}(t)$ – вероятность перехода нейтрона из состояния $\mathbf{k}$ в состояние $\mathbf{k}'$), а $N(E_{k'})$ – число состояний нейтрона с волновым вектором $\mathbf{k}'$, лежащим в телесном угле $d\Omega'$, с энергией, не превосходящей $E_{k'}$. В результате дифференциальное сечение рассеяния (1) принимает вид

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{n(E_{k'})}{\Phi d\Omega'} w_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'}, \quad (2)$$

где $n(E_{k'}) = dN(E_{k'})/dE_{k'}$ – плотность нейтронных состояний. Используя определение величины $w_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'}$ и формулу полной вероятности, имеем

$$w_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'} = \sum_{\sigma, \lambda} P_{\sigma\lambda} \sum_{\sigma', \lambda'} w_{\mathbf{k}\sigma\lambda \rightarrow \mathbf{k}'\sigma'\lambda'}, \quad (3)$$

где σ – спиновое состояние нейтрона ($\sigma = \uparrow, \downarrow$), λ – состояние кристалла, а $P_{\sigma\lambda}$ – вероятность начального состояния σ, λ . В первом приближении нестационарной теории возмущений величина $w_{\mathbf{k}\sigma\lambda \rightarrow \mathbf{k}'\sigma'\lambda'}$ задается формулой

$$w_{\mathbf{k}\sigma\lambda \rightarrow \mathbf{k}'\sigma'\lambda'} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \mathbf{k}'\sigma'\lambda' | V(\mathbf{r}) | \mathbf{k}\sigma\lambda \rangle|^2 \delta(E_{\lambda} - E_{\lambda'} + E_k - E_{k'}). \quad (4)$$

Здесь $V(\mathbf{r})$ – потенциал взаимодействия нейтрона с кристаллом, E_{λ} – энергия кристалла и E_k – энергия нейтрона.

В борновском приближении состояния нейтрона $\mathbf{k}$ описываются плоскими волнами $\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \mathcal{V}^{-1/2} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}$, где $\mathcal{V}$ – объем кристалла, и матричный элемент принимает вид

$$\langle \mathbf{k}'\sigma'\lambda' | V(\mathbf{r}) | \mathbf{k}\sigma\lambda \rangle = \frac{1}{\mathcal{V}} \langle \sigma'\lambda' | V_{-\kappa} | \sigma\lambda \rangle, \quad (5)$$

где $V_{\kappa} = \int V(\mathbf{r}) e^{-i\kappa\mathbf{r}} d\mathbf{r}$ – фурье-образ потенциала, а $\kappa = \mathbf{k} - \mathbf{k}'$ – вектор рассеяния. С учетом равенства $E_k = \hbar^2 k^2 / 2m$ плотность нейтронных состояний задается выражением

$$n(E_{k'}) = \frac{\mathcal{V} k' m d\Omega'}{\hbar^2 (2\pi)^3}, \quad (6)$$

где m – масса нейтрона. Плотность потока падающих нейтронов вычисляется по формуле

$$\Phi = \frac{i\hbar}{2m} (\psi_{\mathbf{k}} \nabla \psi_{\mathbf{k}}^* - \psi_{\mathbf{k}}^* \nabla \psi_{\mathbf{k}}) = \frac{\hbar \mathbf{k}}{\mathcal{V} m}. \quad (7)$$

В результате, используя (3)–(7), получаем дифференциальное сечение (2) в борновском приближении:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{\sigma, \lambda} P_{\sigma\lambda} \sum_{\sigma', \lambda'} |\langle \sigma'\lambda' | V_{-\kappa} | \sigma\lambda \rangle|^2 \delta(E_{\lambda} - E_{\lambda'} + E_k - E_{k'}). \quad (8)$$

2.2. Коррелятор потенциала взаимодействия. Предположим, что потенциал $V(\mathbf{r})$ можно представить как

$$V(\mathbf{r}) = W(\mathbf{r})U, \quad (9)$$

где $W(\mathbf{r})$ – оператор, действующий на состояния нейтрона $\mathbf{k}$ и состояния кристалла λ , а U – оператор, действующий на спиновые состояния нейтрона σ . Используя представление эрмитовой (2×2) -матрицы U в виде

$$U = \sum_{\mu} U^{\mu} \sigma^{\mu}, \quad U^{\mu} = \frac{1}{2} \text{Tr}(U \sigma^{\mu}), \quad \mu = 0, x, y, z,$$

где σ^0 – единичная (2×2) -матрица и σ^x , σ^y , σ^z – матрицы Паули, записываем потенциал (9) как

$$V(\mathbf{r}) = \sum_{\mu} V^{\mu}(\mathbf{r}) \sigma^{\mu}, \quad V^{\mu}(\mathbf{r}) = U^{\mu} W(\mathbf{r}). \quad (10)$$

Потенциал такого вида описывает произвольное взаимодействие нейтрона с кристаллом, включая ядерное взаимодействие, взаимодействия между спином нейтрона и спином атома, орбитальным током и спином электрона.

Независимость состояний σ и λ приводит к следующим упрощениям. Во-первых, матричный элемент потенциала (10) распадается на независимые множители:

$$\langle \sigma'\lambda' | V_{-\kappa} | \sigma\lambda \rangle = \sum_{\mu} \langle \sigma'\lambda' | V_{-\kappa}^{\mu} \sigma^{\mu} | \sigma\lambda \rangle = \sum_{\mu} \langle \lambda' | V_{-\kappa}^{\mu} | \lambda \rangle \langle \sigma' | \sigma^{\mu} | \sigma \rangle.$$

Во-вторых, для вероятности справедливо равенство $P_{\sigma\lambda} = P_\sigma P_\lambda$. В результате формула (8) принимает вид

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{\mu,\nu} \sum_{\lambda} P_\lambda \sum_{\lambda'} \langle \lambda | V_{\kappa}^\mu | \lambda' \rangle \langle \lambda' | V_{-\kappa}^\nu | \lambda \rangle \delta(E_\lambda - E_{\lambda'} + E_k - E_{k'}) \times \\ \times \sum_{\sigma} P_\sigma \sum_{\sigma'} \langle \sigma | \sigma^\mu | \sigma' \rangle \langle \sigma' | \sigma^\nu | \sigma \rangle. \end{aligned} \quad (11)$$

Сначала вычислим среднее по состояниям со спином σ и сумму по состояниям со спином σ' в выражении (11). Используя формулу для матричного элемента произведения матриц, получаем

$$\sum_{\sigma} P_\sigma \sum_{\sigma'} \langle \sigma | \sigma^\mu | \sigma' \rangle \langle \sigma' | \sigma^\nu | \sigma \rangle = \sum_{\sigma} P_\sigma \langle \sigma | \sigma^\mu \sigma^\nu | \sigma \rangle. \quad (12)$$

Для пучка неполяризованных нейтронов ($P_\uparrow = P_\downarrow = 1/2$) справедливо равенство

$$\sum_{\sigma} P_\sigma \langle \sigma | \sigma^\mu \sigma^\nu | \sigma \rangle = \delta_{\mu\nu}, \quad \mu, \nu = 0, x, y, z.$$

Подставляя (12) в формулу (11), с учетом последнего соотношения имеем

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{\mu} \sum_{\lambda} P_\lambda \sum_{\lambda'} \langle \lambda | V_{\kappa}^\mu | \lambda' \rangle \langle \lambda' | V_{-\kappa}^\mu | \lambda \rangle \delta(E_\lambda - E_{\lambda'} + E_k - E_{k'}). \quad (13)$$

Теперь вычисляем среднее по состояниям λ и сумму по состояниям λ' в формуле (13). Используя соотношение

$$\delta(E_\lambda - E_{\lambda'} + \hbar\omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int e^{i(E_\lambda - E_{\lambda'})t/\hbar} e^{i\omega t} dt,$$

где $\hbar\omega = E_k - E_{k'}$, записываем выражение (13) в виде

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{\mu} \frac{1}{2\pi\hbar} \int \sum_{\lambda} P_\lambda \sum_{\lambda'} \langle \lambda | V_{\kappa}^\mu e^{-iE_{\lambda'}t/\hbar} | \lambda' \rangle \langle \lambda' | V_{-\kappa}^\mu e^{iE_{\lambda}t/\hbar} | \lambda \rangle e^{i\omega t} dt.$$

Выбирая в качестве состояний λ собственные функции гамильтониана кристалла,

$$H|\lambda\rangle = E_\lambda|\lambda\rangle, \quad e^{-iHt/\hbar}|\lambda\rangle = e^{-iE_\lambda t/\hbar}|\lambda\rangle,$$

приходим к выражению

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{\mu} \frac{1}{2\pi\hbar} \int \sum_{\lambda} P_\lambda \langle \lambda | e^{iHt/\hbar} V_{\kappa}^\mu e^{-iHt/\hbar} V_{-\kappa}^\mu | \lambda \rangle e^{i\omega t} dt.$$

Сумма по λ есть не что иное, как каноническое среднее

$$\langle \bullet \rangle \equiv \frac{1}{Z} \text{Tr}(\bullet e^{-H/T}) = \sum_{\lambda} P_\lambda \langle \lambda | \bullet | \lambda \rangle,$$

где $Z = \text{Tr} e^{-H/T}$ – статистическая сумма, $P_\lambda = Z^{-1} e^{-E_\lambda/T}$ и T – температура (в энергетических единицах). Используя представление Гейзенберга $V_\kappa^\mu(t) = e^{iHt/\hbar} V_\kappa^\mu e^{-iHt/\hbar}$, получаем окончательную формулу

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_\mu \frac{1}{2\pi\hbar} \int \langle V_\kappa^\mu(t) V_{-\kappa}^\mu \rangle e^{i\omega t} dt, \quad (14)$$

связывающую дифференциальное сечение с коррелятором потенциала.

2.3. Учет колебаний решетки в гармоническом приближении. Предположим теперь, что каждый узел может смещаться на вектор $\mathbf{u}_j$ из положения равновесия $\mathbf{R}_j$. Заменяя $\mathbf{R}_j$ на $\mathbf{R}_j + \mathbf{u}_j$, записываем фурье-образ потенциала в виде

$$V_\kappa^\mu = \sum_j V_j^\mu e^{-i\kappa(\mathbf{R}_j + \mathbf{u}_j)}, \quad V_j^\mu = \int_{\Omega_j} V^\mu(\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (15)$$

где Ω_j – ячейка Вигнера–Зейтца с центром $\mathbf{R}_j$. С учетом (15) коррелятор потенциала принимает вид

$$\langle V_\kappa^\mu(t) V_{-\kappa}^\mu \rangle = \sum_{j,j'} e^{-i\kappa(\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_{j'})} \langle V_j^\mu(t) e^{-i\kappa\mathbf{u}_j(t)} V_{j'}^\mu e^{i\kappa\mathbf{u}_{j'}} \rangle. \quad (16)$$

Предполагая, что колебания узлов и взаимодействие нейтрона с кристаллом происходят независимо, разбиваем среднее на произведение средних:

$$\langle V_j^\mu(t) e^{-i\kappa\mathbf{u}_j(t)} V_{j'}^\mu e^{i\kappa\mathbf{u}_{j'}} \rangle = \langle V_j^\mu(t) V_{j'}^\mu \rangle \langle e^{-i\kappa\mathbf{u}_j(t)} e^{i\kappa\mathbf{u}_{j'}} \rangle. \quad (17)$$

Введем для краткости обозначения $A = -i\kappa\mathbf{u}_j(t)$ и $B = i\kappa\mathbf{u}_{j'}$ и подставим (16) в формулу (14). Тогда с учетом (17) имеем

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{j,j'} e^{-i\kappa(\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_{j'})} \sum_\mu \frac{1}{2\pi\hbar} \int \langle V_j^\mu(t) V_{j'}^\mu \rangle \langle e^A e^B \rangle e^{i\omega t} dt. \quad (18)$$

Преобразуем выражение $\langle e^A e^B \rangle$. Оператор смещения на узле $\mathbf{u}_j(t)$ задается выражением (см., например, монографию [14])

$$\mathbf{u}_j(t) = \left(\frac{\hbar}{2MN} \right)^{1/2} \sum_s \frac{\mathbf{e}_s}{\sqrt{\omega_s}} (b_s e^{i(\mathbf{q}\mathbf{R}_j - \omega_s t)} + b_s^\dagger e^{-i(\mathbf{q}\mathbf{R}_j - \omega_s t)}), \quad (19)$$

где M – масса атома, N – число узлов кристаллической решетки, $b_s^\dagger$ и b_s – операторы рождения и уничтожения, ω_s – частота колебаний и $\mathbf{e}_s$ – вектор поляризации s -й нормальной моды. С учетом (19) операторы A и B принимают вид

$$A = -i \sum_s (\alpha_s b_s + \alpha_s^* b_s^\dagger), \quad B = i \sum_s (\beta_s b_s + \beta_s^* b_s^\dagger), \quad (20)$$

где

$$\alpha_s = \left(\frac{\hbar}{2MN} \right)^{1/2} \frac{\kappa \mathbf{e}_s}{\sqrt{\omega_s}} e^{i(\mathbf{q}\mathbf{R}_j - \omega_s t)}, \quad \beta_s = \left(\frac{\hbar}{2MN} \right)^{1/2} \frac{\kappa \mathbf{e}_s}{\sqrt{\omega_s}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_{j'}}. \quad (21)$$

Поскольку коммутатор $[A, B] = \sum_s (\alpha_s \beta_s^* - \alpha_s^* \beta_s)$ пропорционален единичному оператору, справедлива формула (см., например, монографию [14])

$$e^A e^B = e^{A+B} e^{[A,B]/2}. \quad (22)$$

Смещения $\mathbf{u}_j$ имеют гауссово распределение¹⁾, следовательно, гауссово распределение имеют также величины A и B , и для них справедливы соотношения $\langle e^A \rangle = e^{\langle A^2 \rangle / 2}$, $\langle e^B \rangle = e^{\langle B^2 \rangle / 2}$ и $\langle e^{A+B} \rangle = e^{\langle (A+B)^2 \rangle / 2}$ (см., например, книгу [26]). Тогда каноническое среднее выражения (22) принимает вид

$$\langle e^A e^B \rangle = e^{\langle (A+B)^2 \rangle / 2} e^{\langle [A,B] \rangle / 2} = e^{\langle A^2 \rangle / 2} e^{\langle B^2 \rangle / 2} e^{\langle AB \rangle} = \langle e^A \rangle \langle e^B \rangle e^{\langle AB \rangle}. \quad (23)$$

Рассматривая вклад лишь упругого рассеяния на фононах, $e^{\langle AB \rangle} = 1$ (подробнее см. [14]), приходим к соотношению

$$\langle e^A e^B \rangle = \langle e^A \rangle \langle e^B \rangle. \quad (24)$$

Для канонического среднего $\langle e^Q \rangle$ с произвольным оператором $Q = \sum_s (c_s b_s + d_s b_s^\dagger)$, линейно зависящим от смещений, в гармоническом приближении справедлива формула [15]

$$\langle e^Q \rangle = \exp \left[\frac{1}{2} \sum_s c_s d_s \operatorname{cth} \frac{\hbar \omega_s}{2T} \right]. \quad (25)$$

Вычисляя с помощью этой формулы средние $\langle e^A \rangle$ и $\langle e^B \rangle$ в выражении (24), с учетом равенств (20) имеем

$$\langle e^A e^B \rangle = \exp \left[-\frac{1}{2} \sum_s (|\alpha_s|^2 + |\beta_s|^2) \operatorname{cth} \frac{\hbar \omega_s}{2T} \right].$$

Используя (21), приходим к выражению

$$\langle e^A e^B \rangle = e^{-2W(\boldsymbol{\kappa})}, \quad (26)$$

где

$$2W(\boldsymbol{\kappa}) = \frac{\hbar}{2MN} \sum_s \frac{(\boldsymbol{\kappa} \mathbf{e}_s)^2}{\omega_s} \operatorname{cth} \frac{\hbar \omega_s}{2T}. \quad (27)$$

Наконец, подставляя (26) в (18) и возвращаясь обратно к фурье-образу потенциала (15), получаем выражение для дифференциального сечения рассеяния:

$$\frac{d^2 \sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi \hbar^2} \right)^2 e^{-2W(\boldsymbol{\kappa})} \sum_\mu \frac{1}{2\pi \hbar} \int \langle V_\mu^\mu(t) V_{-\mu}^\mu \rangle e^{i\omega t} dt. \quad (28)$$

Экспонента $e^{-2W(\boldsymbol{\kappa})}$ и называется ФДВ. Как видно из (27), ФДВ зависит от вектора рассеяния и температуры.

¹⁾Простое доказательство этого факта дано в нашей статье [25].

3. ФДВ В ПОЛЯРИЗОВАННОМ МАГНИТНОМ РАССЕЯНИИ

Магнитное рассеяние в металлах определяется взаимодействием между спином нейтрона и спинами электронов²⁾. Фурье-образ потенциала магнитного взаимодействия имеет вид (подробнее см. [11])

$$V_{\kappa} = \frac{2\pi\gamma e^2 \hbar^2}{m_e m c^2} \sum_{\alpha} \tilde{s}_{\kappa}^{\alpha} \sigma^{\alpha}, \quad \alpha = x, y, z, \quad (29)$$

где через m_e и $-e$ обозначены масса и заряд электрона, c – скорость света, $\gamma \approx 1.913$, $\tilde{s}_{\kappa} = \mathbf{s}_{\kappa} - (\hat{\kappa} \mathbf{s}_{\kappa}) \hat{\kappa}$, $\mathbf{s}_{\kappa}$ – фурье-образ оператора спиновой плотности, а $\hat{\kappa} = \kappa/\kappa$ – единичный вектор. Подставляя (29) в (28), получаем дифференциальное сечение неполяризованного магнитного рассеяния:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = N \left(\frac{\gamma e^2}{m_e c^2} \right)^2 \frac{k'}{k} e^{-2W(\kappa)} \sum_{\alpha, \beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{\kappa}^{\alpha} \hat{\kappa}^{\beta}) S^{\alpha\beta}(\kappa, \omega), \quad (30)$$

где

$$S^{\alpha\beta}(\kappa, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar N} \int \langle s_{\kappa}^{\alpha}(t) s_{-\kappa}^{\beta} \rangle e^{i\omega t} dt, \quad \alpha, \beta = x, y, z,$$

– функция рассеяния. В парамагнитной области мы имеем $S^{\alpha\beta}(\kappa, \omega) = S^z(\kappa, \omega) \delta_{\alpha\beta}$. Тогда с учетом $N = \mathcal{V}/\Omega_{\text{ws}}$ (здесь Ω_{ws} – объем ячейки Вигнера–Зейтца) формулу (30) можно записать в виде

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega' dE_{k'}} = 2 \left(\frac{\gamma e^2}{m_e c^2} \right)^2 \frac{1}{3} \frac{\mathcal{V}}{\Omega_{\text{ws}}} \frac{k'}{k} e^{-2W(\kappa)} S(\kappa, \omega), \quad (31)$$

где $S(\kappa, \omega) = 3S^z(\kappa, \omega)$. Непосредственное применение формулы (31) затруднительно, поскольку в эксперименте необходимо выделить магнитный вклад в рассеяние.

В эксперименте по поляризованному магнитному рассеянию измеряется магнитный вклад в сечение рассеяния (см., например, [2]). В парамагнитной области формула для магнитного вклада принимает вид [28] (подробный вывод см. в работе [11])

$$\left(\frac{d^2\sigma^{\uparrow\downarrow}}{d\Omega' dE_{k'}} \right)_{\parallel} - \left(\frac{d^2\sigma^{\uparrow\downarrow}}{d\Omega' dE_{k'}} \right)_{\perp} = \left(\frac{\gamma e^2}{m_e c^2} \right)^2 \frac{1}{3} \frac{\mathcal{V}}{\Omega_{\text{ws}}} \frac{k'}{k} e^{-2W(\kappa)} S(\kappa, \omega). \quad (32)$$

В работах [5], [19], [28] описаны эксперименты, в которых измеряется суммарное сечение по всем энергиям. Интегрируя (32) по энергии $E_{k'} = E_k - \hbar\omega$, получаем

$$\left(\frac{d\sigma^{\uparrow\downarrow}}{d\Omega'} \right)_{\parallel} - \left(\frac{d\sigma^{\uparrow\downarrow}}{d\Omega'} \right)_{\perp} = \left(\frac{\gamma e^2}{m_e c^2} \right)^2 \frac{1}{3} \frac{\mathcal{V}}{\Omega_{\text{ws}}} \frac{k'}{k} e^{-2W(\kappa)} M^2(\kappa),$$

где

$$M(\kappa) = \left(\hbar \int S(\kappa, \omega) d\omega \right)^{1/2}$$

— эффективный магнитный момент.

²⁾В ферромагнитных металлах спин-орбитальное взаимодействие дает малый вклад в сечение рассеяния (см., например, статью [27]).

Вычислим ФДВ $e^{-2W(\kappa)}$ для ферромагнитных металлов. В модели Дебая при высоких температурах выражение (27) принимает вид³⁾ (подробнее см. статью [11])

$$2W(\kappa) = \frac{3\hbar^2 \kappa^2}{M} \frac{T}{\Theta_D^2}, \quad T \gg \Theta_D, \quad (33)$$

где Θ_D – температура Дебая (в энергетических единицах). Значения Θ_D определяются следующим образом. Теплоемкость решетки вычисляется как функция температуры T с использованием плотности фононных состояний, полученной по экспериментальным данным, и подставляется в формулу для теплоемкости в модели Дебая (см, например, [26], [30]). Далее Θ_D полагается неизвестным параметром и при каждом T определяется “экспериментальная” температура Дебая $\Theta_D^{\text{exp}}(T)$. Изменение величины $\Theta_D^{\text{exp}}(T)$ с температурой для твердых тел достигает порядка 10% [30]. В наших расчетах в качестве Θ_D используется значение $\Theta_D^{\text{exp}}(T)$ при больших T , взятое из книги [31]. Исходные данные расчетов приведены в табл. 1.

ТАБЛИЦА 1. Экспериментальная температура Кюри T_C^{exp} , температура Дебая Θ_D и атомная масса M для ферромагнитных металлов.

Параметр	Fe	Co	Ni
T_C^{exp} , К [32]	1044	1390	631
Θ_D , К [31]	418	385	375
M , а.е.м. [33]	55.85	58.93	58.69

ТАБЛИЦА 2. ФДВ $e^{-2W(\kappa)}$ для ферромагнитных металлов, вычисленный с использованием формулы (33) в парамагнитной области при $\kappa = 3 \text{ \AA}^{-1}$.

T/T_C^{exp}	Fe	T/T_C^{exp}	Co	T/T_C^{exp}	Ni
1.2	0.845	1.05	0.803	1.25	0.882
1.3	0.833	1.1	0.795	1.5	0.860
1.4	0.822	1.15	0.787	2.0	0.818

В табл. 2 приведены рассчитанные значения ФДВ для ферромагнитных металлов выше температуры Кюри. ФДВ вычислен по формуле (33) при $\kappa = 3 \text{ \AA}^{-1}$, что отвечает максимальной величине вектора рассеяния в эксперименте по поляризованному магнитному рассеянию [5], [19]. Значения температур в парамагнитной области для железа и никеля соответствуют экспериментальным значениям из работ [5], [19]. Как видно из табл. 2, учет колебаний решетки за счет ФДВ вносит поправку порядка 20% для всех ферромагнитных металлов. Наши результаты находятся в согласии с поправкой для меди, равной 18%, которая получена в работе [14] при том же значении вектора рассеяния и температуре $T = 1000 \text{ K}$.

³⁾В книге [29] расчетная формула для $W(\kappa)$ получена с помощью формулы Линдемана для температуры плавления. Этот результат позволяет оценить ФДВ по температуре плавления вместо температуры Дебая. Однако формула Линдемана позволяет получить лишь качественную оценку (см. монографию [30]).

Рис. 1. ФДВ $e^{-2W(\kappa)}$ для ферромагнитных металлов, рассчитанный по формуле (33).

На рис. 1 приведены результаты расчета ФДВ по формуле (33) для ферромагнитных металлов в парамагнитной области в более широком диапазоне значений κ от нуля до $4 \text{ \AA}^{-1}$. Этот диапазон отвечает эксперименту по поляризованному рассеянию нейтронов, описанному в работе [18]. Из рис. 1 видно, что поправка составляет до 25–30% для всех ферромагнитных металлов⁴⁾. При больших κ необходим более последовательный учет фононов в металлах (см., например, монографию [34]).

Дальнейшие результаты мы иллюстрируем на примере железа. Квадрат локального магнитного момента можно вычислить по формуле

$$m_L^2 = \frac{4\pi}{\Omega_{\text{BZ}}} \int_0^{q_{\text{B}}} q^2 M^2(q) dq, \quad (34)$$

где Ω_{BZ} – объем зоны Бриллюэна, для простоты замененной сферой равного объема с радиусом q_{B} (для ОЦК-железа $q_{\text{B}} = 1.71 \text{ \AA}^{-1}$). Как видно из рис. 1 и рис. 2, в пределах зоны Бриллюэна ФДВ дает несущественную поправку (для ОЦК-железа не более 4% [11]). Поэтому при вычислении локального момента на основе результатов эксперимента по рассеянию нейтронов можно опустить ФДВ (см., например, [5]). По той же причине поправка за счет колебаний решетки не играет решающей роли

⁴⁾Строго говоря, расчет величины ФДВ для кобальта справедлив лишь до температуры плавления $T/T_C^{\text{exp}} \approx 1.27$.

Рис. 2. Функция $q^2 M^2(q)$ для ОЦК-железа при температуре $T/T_C^{\text{cal}} = 1.21$, вычисленная в ДТСФ (штриховые линии) с энергетическим окном ε_{max} , равным 50 и 200 мЭВ, и по точной формуле. Сплошными линиями изображены результаты, умноженные на ФДВ с показателем (33).

и при расчете других магнитных характеристик, которые определяются интегралом по зоне Бриллюэна, таких как локальная восприимчивость, одноузельный спиновый коррелятор, ядерные времена релаксации и др. (см. подробности их вычисления в ДТСФ в работе [35]). Основную роль в описании магнитных свойств металлов при конечных температурах играют тепловые спиновые флуктуации.

Квадрат локального магнитного момента (34) пропорционален площади под графиком функции $q^2 M^2(q)$. На рис. 2 приведены результаты расчета $q^2 M^2(q)$ для ОЦК-железа в гауссовом приближении ДТСФ с энергетическим окном ε_{max} , равным 50 мЭВ и 200 мЭВ, и по точной формуле при температуре $T/T_C^{\text{cal}} = 1.21$, где $T_C^{\text{cal}} = 1.65 T_C^{\text{exp}}$ – расчетная температура Кюри для ОЦК-железа (подробности вычислений см. в [11], [4]).

Локальный момент $m_L = 1.2 \mu_B$, рассчитанный в ДТСФ с $\varepsilon_{\text{max}} = 50$ мЭВ, находится в согласии с экспериментальным значением $m_L = 1.3 \mu_B$ [5], полученным при той же температуре T/T_C^{exp} . Локальный момент, вычисленный с $\varepsilon_{\text{max}} = 200$ мЭВ, получился равным $m_L = 2.0 \mu_B$; экспериментальное значение при том же T/T_C^{exp} равно $1.55 \mu_B$ [36]. Расчет в ДТСФ по точной формуле дает $m_L = 2.21 \mu_B$. Этот результат находится в согласии с расчетами, использующими гамильтонианы с классическими спинами [37], [38] (подробнее см. в работе [10]).

Оценим вклад ангармонических поправок в ФДВ для ОЦК-железа, используя результаты статей [21], [22]. В обозначениях работы [21] имеем

$$2W(\kappa) = \frac{\kappa^2}{8\pi^2} B(T), \quad (35)$$

где $B(T)$ – функция, пропорциональная среднеквадратичному смещению атомов. В гармоническом приближении зависимость B от температуры линейная:

$$B_h(T) = 8\pi^2 \alpha_0^{-1} T, \quad (36)$$

где $\alpha_0 = 8.39 \text{ эВ} \cdot \text{\AA}^{-2}$ – параметр, определяемый из расчета ФДВ по формуле (27) с реалистичной плотностью фононных состояний. В ангармоническом приближении функция $B(T)$ нелинейна и содержит эмпирический параметр, который определяется по экспериментальным данным. В работах [21], [22] приведен расчет величины

$$Y(T) = 0.86(B(T_0) - B(T)), \quad (37)$$

где $T_0 = 286 \text{ К}$, а эмпирический параметр функции $B(T)$ выбран так, чтобы кривая $Y(T)$ проходила через экспериментальное значение при $T = 1321 \text{ К}$. Предполагая, что гармоническое и ангармоническое приближения дают близкие результаты при комнатных температурах, $B(T_0) \approx B_h(T_0)$, мы определяем значения $B(T)$ по приведенным в [21] значениям $Y(T)$, а затем вычисляем ФДВ $e^{-2W(\kappa)}$ в ангармоническом приближении, используя формулу (35).

ТАБЛИЦА 3. ФДВ для железа, вычисленный при температуре $T = 1373 \text{ К}$ по формуле (33), т. е. в гармоническом приближении с дебаевской плотностью фононных состояний (столбец 2), и по формуле (35) с реальной плотностью состояний в гармоническом (столбец 3) и ангармоническом (столбец 4) приближениях.

$\kappa, \text{\AA}^{-1}$	$e^{-2W(\kappa)}$		
1.7	0.942	0.960	0.934
3.0	0.833	0.881	0.809

В табл. 3 приведены значения ФДВ для ОЦК-железа в гармоническом и ангармоническом приближениях при температуре $T = 1373 \text{ К}$. Как видно из таблицы, различия результатов гармонического приближения с дебаевской и реальной плотностями фононных состояний невелики (ср. столбцы 2 и 3). Различия между гармоническим и ангармоническим приближениями с реальной плотностью состояний в пределах зоны Бриллюэна также незначительны: при $\kappa = 1.7 \text{\AA}^{-1}$ ФДВ дает поправку 4% в гармоническом и около 7% в ангармоническом приближениях (см. столбцы 3 и 4). При больших значениях вектора рассеяния ангармонический вклад возрастает: так, при $\kappa = 3 \text{\AA}^{-1}$ в гармоническом приближении поправка за счет ФДВ составляет 12%, а в ангармоническом – примерно 19%.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выведена формула, связывающая сечение рассеяния нейтронов с коррелятором потенциала, который описывает произвольное взаимодействие нейтрона с кристаллом. Предложен краткий и простой вывод выражения для ФДВ в гармоническом

приближении в случае произвольного типа рассеяния. ФДВ для ферромагнитных металлов вычислен как функция модуля вектора рассеяния κ и температуры T . Показано, что при значениях κ , лежащих в пределах зоны Бриллюэна, ФДВ дает несущественную поправку и температурная зависимость магнитных характеристик определяется главным образом тепловыми спиновыми флуктуациями. Однако при значениях κ , отвечающих эксперименту по поляризованному магнитному рассеянию для ферромагнитных металлов в парамагнитной области, поправка за счет ФДВ может достигать 20–30%. При высоких температурах на примере железа показано, что ангармонический вклад в ФДВ может быть заметным, однако он требует громоздких вычислений. Результаты в значительной мере зависят от используемых приближений. Гармоническое приближение дает удовлетворительные значения ФДВ даже за пределами зоны Бриллюэна.

Полученные результаты могут быть использованы для оценки ФДВ в различных экспериментах по рассеянию нейтронов, а также в экспериментах по рентгеновской и мессбауэровской спектроскопии.

Благодарности. Авторы признательны рецензенту за полезные замечания.

Список литературы

- [1] Т. Мория, *Спиновые флуктуации в магнетиках с коллективизированными электронами*, Мир, М., 1988.
- [2] J. Schweizer, “Polarized neutrons and polarization analysis”, *Neutron Scattering from Magnetic Materials*, ed. T. Chatterji, Elsevier, Amsterdam, 2006, 153–213.
- [3] N. Plakida, *High-Temperature Cuprate Superconductors: Experiment, Theory, and Applications*, Springer Series in Solid-State Sciences, **166**, Springer, Berlin, 2010.
- [4] Г. В. Парадеженко, Н. Б. Мельников, Б. И. Резер, “Коррелятор спиновой плотности и его фурье-образ в динамической теории спиновых флуктуаций”, *Выч. мет. программирование*, **17**:4 (2016), 474–486.
- [5] P. J. Brown, H. Capellmann, J. Déportes, D. Givord, K. R. A. Ziebeck, “Observations of ferromagnetic correlations at high temperatures in paramagnetic iron”, *J. Magn. Magn. Mater.*, **30**:2 (1982), 243–248.
- [6] J. Hubbard, “Panel discussion on itinerant electron magnetism”, *Physics of Transition Metals* (University of Leeds, 18–22 August, 1980), Institute of Physics Conference Series, **55**, ed. P. Rhodes, IOP, Bristol, 1981, 669–687.
- [7] H. A. Mook, “Neutron Scattering Studies of Magnetic Excitations in Itinerant Magnets”, *Spin Waves and Magnetic Excitations*, eds. A. S. Borovik-Romanov, S. K. Sinha, Elsevier, Amsterdam, 1988, 425–478.
- [8] N. B. Melnikov, B. I. Reser, V. I. Grebennikov, “Extended dynamic spin-fluctuation theory of metallic magnetism”, *J. Phys.: Condens. Matter*, **23**:27 (2011), 276003, 11 pp.
- [9] N. B. Melnikov, B. I. Reser, “Short-range order above the Curie temperature in the dynamic spin-fluctuation theory”, *J. Magn. Magn. Mater.*, **397** (2016), 347–351.
- [10] N. B. Melnikov, B. I. Reser, G. V. Paradezhenko, “Spin-density correlations in the dynamic spin-fluctuation theory: Comparison with polarized neutron scattering experiments”, *J. Magn. Magn. Mater.*, **411** (2016), 133–139.
- [11] Н. Б. Мельников, Г. В. Парадеженко, Б. И. Резер, “Корреляции спиновой плотности и магнитное нейтронное рассеяние в ферромагнитных металлах”, *ТМФ*, **191**:1 (2017), 151–171.
- [12] L. Van Hove, “Time-dependent correlations between spins and neutron scattering in ferromagnetic crystals”, *Phys. Rev.*, **95**:6 (1954), 1374–1384.
- [13] Ю. А. Изюмов, Р. П. Озеров, *Магнитная нейтронография*, Наука, М., 1966.
- [14] G. L. Squires, *Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering*, Dover, New York, 1996.

- [15] N. D. Mermin, "A short simple evaluation of expressions of the Debye–Waller form", *J. Math. Phys.*, **7**:6 (1966), 1038.
- [16] C. G. Windsor, "Neutron scattering experiments on itinerant electron magnets", *Physica B+C*, **91** (1977), 119–129.
- [17] Ч. Киттель, *Введение в физику твердого тела*, Наука, М., 1978.
- [18] P. J. Brown, H. Capellmann, J. Déportes, D. Givord, K. R. A. Ziebeck, "Ferromagnetic correlations in both the α and γ -phases of paramagnetic iron", *J. Magn. Magn. Mater.*, **30**:3 (1983), 335–339.
- [19] P. J. Brown, H. Capellmann, J. Déportes, D. Givord, S. M. Johnson, K. R. A. Ziebeck, "The paramagnetic response of nickel at high temperature", *J. Phys. France*, **47**:3 (1986), 491–496.
- [20] A. A. Maradudin, P. A. Flinn, "Anharmonic contributions to the Debye–Waller factor", *Phys. Rev.*, **129**:6 (1963), 2529–2547.
- [21] L. P. Pathak, J. Prakash, V. P. Singh, M. P. Hemkar, "Debye–Waller factors of α -iron and sodium. II Willis's anharmonic theory", *Aust. J. Phys.*, **28**:6 (1975), 707–713.
- [22] H. L. Kharoo, O. P. Gupta, M. P. Hemkar, "Temperature dependence of Debye–Waller factors in bcc metals. I", *J. Phys. Soc. Japan*, **43**:6 (1977), 2030–2035.
- [23] B. T. Willis, "Lattice vibrations and the accurate determination of structure factors for the elastic scattering of X-rays and neutrons", *Acta Cryst. A*, **25**:2 (1969), 277–300.
- [24] F. D. Vila, J. J. Rehr, H. H. Rossner, H. J. Krappe, "Theoretical x-ray absorption Debye–Waller factors", *Phys. Rev. B*, **76**:1 (2007), 014301, 11 pp.
- [25] G. V. Paradezhenko, N. B. Melnikov, B. I. Reser, *Lattice vibrations in the harmonic approximation*, arXiv:1711.04302.
- [26] А. Марадудин, Э. Монтролл, Дж. Вейсс, *Динамическая теория кристаллической решетки в гармоническом приближении*, Мир, М., 1965.
- [27] R. J. Elliott, "Theory of neutron scattering by conduction electrons in a metal and on the collective-electron model of a ferromagnet", *Proc. Roy. Soc. London Ser. A*, **235**:1202 (1956), 289–304.
- [28] K. R. A. Ziebeck, P. J. Brown, "Measurement of the paramagnetic response function in the weak itinerant magnetic compound MnSi using polarised neutron scattering", *J. Phys. F: Met. Phys.*, **10**:9 (1980), 2015–2024.
- [29] Дж. Займан, *Принципы теории твердого тела*, Мир, М., 1974.
- [30] J. J. Quinn, K.-S. Yi, *Solid State Physics: Principles and Modern Applications*, Springer, Berlin, 2009.
- [31] К.-Н. Hellwege, J. L. Olsen (eds.), *Metals: Phonon States. Electron States and Fermi Surfaces. Phonon States of Elements. Electron States and Fermi Surfaces of Alloys*, Landolt–Börnstein – Group III Condensed Matter, **13A**, Springer, Berlin, 1981.
- [32] J. Crangle, G. M. Goodman, "The magnetization of pure iron and nickel", *Proc. Roy. Soc. London Ser. A*, **321**:1547 (1971), 477–491.
- [33] W. B. Pearson, *Handbook of Lattice Spacings and Structures of Metals and Alloys*, Pergamon Press, New York, 1958.
- [34] D. J. Kim, *New Perspectives in Magnetism of Metals*, Kluwer, New York, 1999.
- [35] N. B. Melnikov, B. I. Reser, "Magnetism of metals in the dynamic spin-fluctuation theory", *Phys. Metals Metallogr.*, **117**:13 (2016), 1328–1383.
- [36] P. J. Brown, H. Capellmann, J. Déportes, D. Givord, S. M. Johnson, J. W. Lynn, K. R. A. Ziebeck, "The magnetic response of paramagnetic Fe at high energy transfers", *J. Phys. France*, **46**:5 (1985), 827–830.
- [37] A. V. Ruban, S. Khmelevskiy, P. Mohn, B. Johansson, "Temperature-induced longitudinal spin fluctuations in Fe and Ni", *Phys. Rev. B*, **75**:5 (2007), 054402, 7 pp.
- [38] P.-W. Ma, S. L. Dudarev, "Longitudinal magnetic fluctuations in Langevin spin dynamics", *Phys. Rev. B*, **86**:5 (2012), 054416, 10 pp.

Поступила в редакцию 24.03.2017,
после доработки 22.04.2017