

5.4 Magnetische Ordnung: Ferromagnetismus,...

Bislang hatten wir zur Beschreibung magnetischer Phänomene lediglich die Reaktion der Gitterbausteine eines Festkörpers oder der freien Elektronen in Metallen auf ein externes Magnetfeld betrachtet. Dies führte im Fall der Ausrichtung von vorhandenen magnetischen Momenten zum Paramagnetismus (Feldverstärkung), bzw. zum Diamagnetismus als Folge der Induktion von magnetischen Momenten (Feldabschwächung). In beiden Fällen blieb eine Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten unberücksichtigt.¹

Im folgenden betrachten wir **Wechselwirkungen** im elektronischen Systems des Festkörpers. Diese Wechselwirkungen erklären z.B. auch die mittels adiabatischer Entmagnetisierung erreichbaren tiefsten Temperaturen. Eine wesentliche Konsequenz aus der Berücksichtigung von Wechselwirkungen ist die Ausbildung einer **magnetischen Ordnung**.

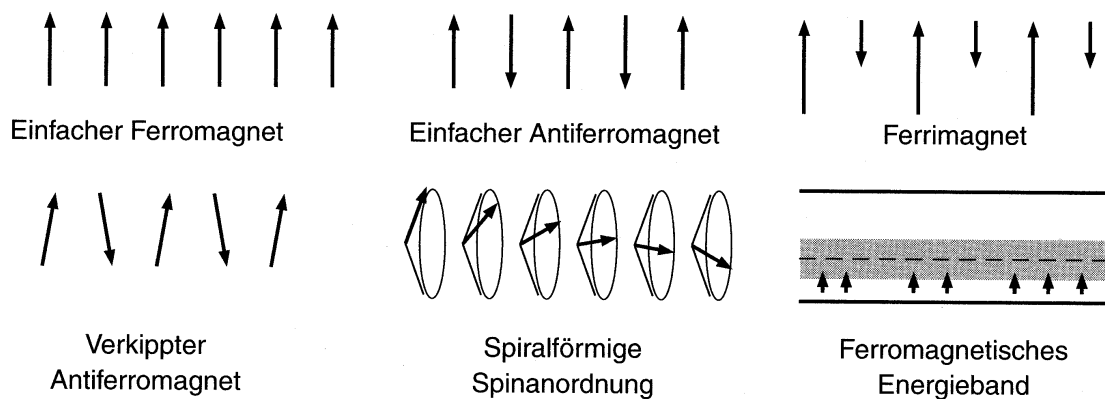


Abb. 5.16: Ordnungszustände von Elektronenspins [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.1].

Typische Eigenschaften von Ferromagnetika

(in Analogie zu Ferroelektrika)

- Ausbilden einer spontanen Magnetisierung M_s unterhalb T_c (Curie-Temperatur)
- M_s ist auf bestimmte Kristallrichtungen beschränkt
- M_s ist umkehrbar: $M_s \rightarrow -M_s$
- Hysteresekurven $M_s(H)$ unterhalb T_c
- Paramagnetisches Verhalten oberhalb T_c
- nahe T_c : μ bis 10^6
- Domänenbildung \rightarrow geringere Streufelder (magnetische Energie)

¹Mit Ausnahme des Paulischen Spin-Paramagnetismus, bei dem eine Wechselwirkung der Elektronen untereinander über das Pauli-Prinzip berücksichtigt wurde.

Ferromagnetische Domänen und Hysterese in $M(H)$

Ähnlich wie bei Ferroelektrika tritt im ferromagnetischen Zustand häufig die Bildung von Domänen auf. Innerhalb einer ferromagnetischen Domäne sind die magnetischen Momente parallel ausgerichtet \rightarrow lokal gesättigte Magnetisierung.

An der Domänengrenze ändert sich die Richtung der Magnetisierung.

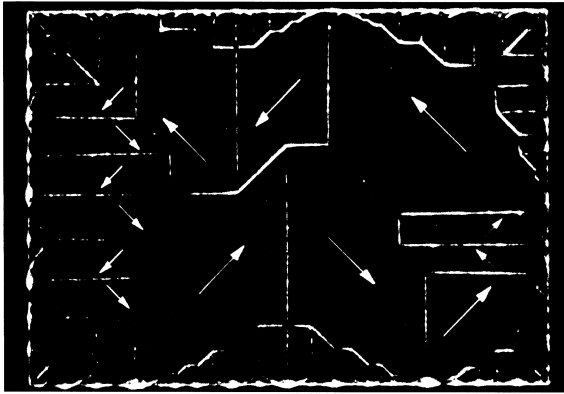


Abb. 5.17: Ferromagnetische Domänen auf der Oberfläche eines einkristallinen Nickelplättchens (Abbildung der Domänengrenzen mittels Bittertechnik). Die Magnetisierungsrichtung innerhalb einer Domäne wird bestimmt, indem man das Wachsen oder Schrumpfen der Domäne in einem äußeren Magnetfeld beobachtet (nach R.W.DeBlois) [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.27].

Abbildung der Domänenwände mittels **Bitterdecoration**:

Hierzu beschichtet man die Probe mit einer kolloidalen Lösung ferromagnetischer Teilchen (z.B. Fe_3O_4). Diese sammeln sich an den Stellen großer Gradienten des magnetischen Streufeldes an, also z.B. an einer **Bloch-Wand**:

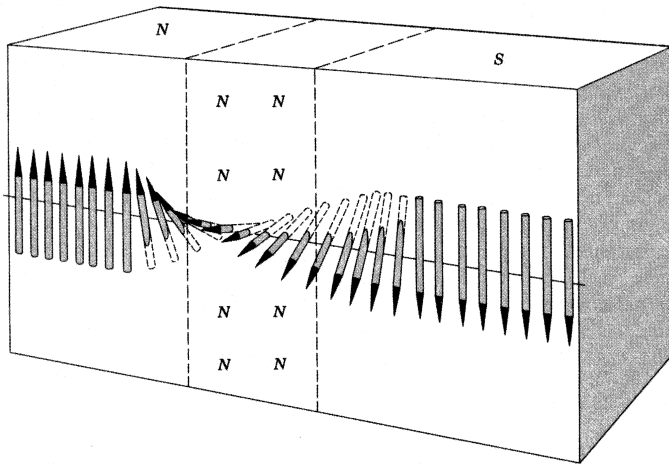


Abb. 5.18: Struktur einer Bloch-Wand zwischen ferromagnetischen Domänen. Die Dicke des Übergangsbereichs beträgt in Eisen etwa 300 Gitterkonstanten [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.32].

Innerhalb einer Bloch-Wand dreht die Magnetisierungsrichtung stetig (über viele Gitterebenen hinweg). Dadurch wird die (positive) Austauschenergie [s.u.] zwischen magnetischen Dipolen mit antiparalleler Orientierung minimiert. Die Drehung erfolgt so dass die Magnetisierung immer parallel zur Wandfläche steht (energetisch günstig in Proben deren Dicke größer ist als die Wandstärke; sonst: Ausbildung von Neel-Wänden).

Hysteresekurve

Aufgrund der Bildung von Domänen ergibt sich ein typischerweise hysteretischer $M(H)$ -Verlauf:

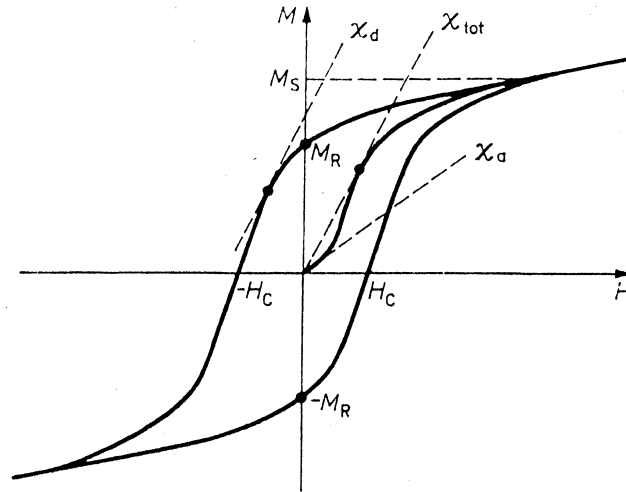


Abb. 5.19: Hysteresekurve eines Ferromagnetikums mit Koerzitivfeld H_c , Sättigungsmagnetisierung M_s , remanenter Magnetisierung M_r und Anfangsuszeptibilität χ_a , differentieller S. χ_d bzw. totaler S. χ_{tot} [aus Weissmantel, Hamann, *Grundlagen der Festkörperphysik* (1978); Abb.10.4].

Je nach Größe des Koerzitivfeldes H_c unterscheidet man

- **weichmagnetische** Stoffe:
 - $H_c = 0.5 \text{ G}$ (Fe-Si_{4%}) bis zu 2 mG (Supermalloy)
 - geringe Hystereseverluste (z.B. für Transformatoren)
 - große Anfangspermeabilität (bis zu 10^5)
- **hartmagnetische** Stoffe: $H_c = 600 \text{ G}$ (AlNiCo) bis zu 10.000 G (SmCo₅)
 - als Permanentmagnete
 - kleine Anfangspermeabilität (1...10)

weitere Methoden zur Abbildung Magnetischer Domänen und Domänenwände

• Magnetische Kraftmikroskopie (MFM)²

Diese Methode ist eine Weiterentwicklung der Raster-Tunnelmikroskopie (STM)³. Im Fall der MFM verwendet man eine magnetische Tunnelspitze (idealerweise wäre die Spitze ein Einzeldomäniges Teilchen) die über die Probe bewegt wird.

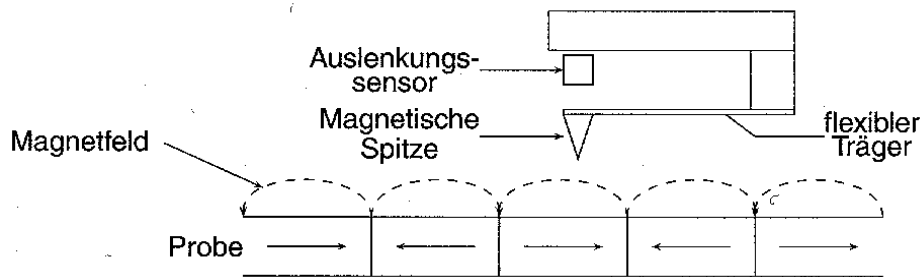


Abb. 5.20: Prinzip der magnetischen Kraftmikroskopie. Eine magnetische Spitze, befestigt an einem elastischen Träger, wird über die ebene Oberfläche einer Probe geführt und detektiert das magnetische Feld von Bereichen unterschiedlicher Magnetisierung [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.37].

Magnetische Kräfte \Rightarrow Auslenkung

erlaubt die Abbildung von magnetischem Fluss mit hoher Ortsauflösung: 10 – 100 nm

Ermöglicht z.B. die Abbildung magnetischer "Bits":

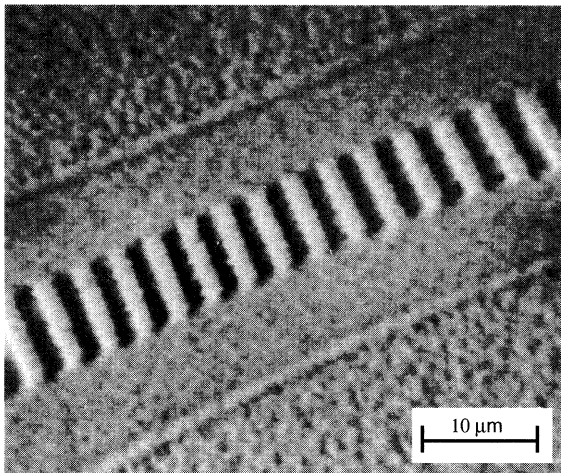


Abb. 5.21: Testmagnetisierung der Oberfläche einer Scheibe aus Kobaltlegierung in "Bits" von $2\mu\text{m}$ Länge, abgebildet mittels MFM (Magnetic Force Microscope) (Nach Rugar et al.) [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.38].

²MFM = magnetic force microscopy

³STM = scanning tunneling microscopy

- **Kerr-Mikroskopie**

magnetooptischer Kerr-Effekt:

Drehung der Polarisationssebene linear polarisierten Lichts bei der **Reflexion** an der Oberfläche einer (lichtundurchlässigen) ferromagnetischen Substanz.

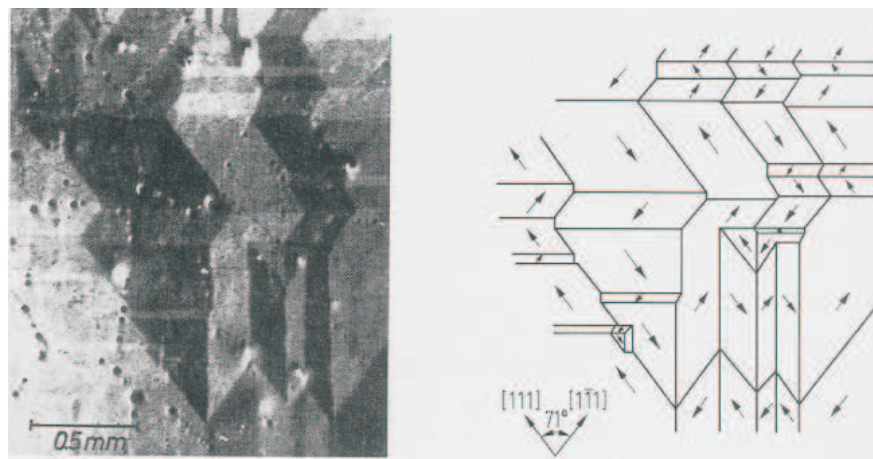


Abb. 5.22: **Links:** Magnetooptische Kerr-Effekt-Abbildung der Domänenstruktur auf der (100)-Ebene eines Ni-Einkristalls. **Rechts:** Schematische Darstellung [aus Bergmann-Schaefer, *Lehrbuch der Experimentalphysik* (1992); Abb.8.33].

Longitudinaler Kerr-Effekt:

Magnetisierung der Domänen und Polarisationssebene liegen in der Einfallsebene des Lichts

⇒ maximaler Drehwinkel → maximaler Kontrast

- räumliche Auflösung: begrenzt durch Wellenlänge des Lichts $\sim \mu\text{m}$

alternativ:

- **magnetooptischer Faraday-Effekt:**

Drehung der Polarisationssebene in **Transmission**

Kann auch in Reflexionsmessungen ausgenutzt werden:

erfordert Aufbringen einer stark faradaydrehenden Schicht (z.B. $\text{EuS} + \text{EuF}_2$) auf die zu untersuchende Probe

[z.B. für Abbildung von Flusstrukturen in Supraleitern]

- **Lorentz-Mikroskopie:**

Beruhet auf der Ablenkung eines Elektronenstrahls beim Durchgang (Transmission!) durch sehr dünne ferromagnetische Schicht.

→ erfordert extrem dünne Proben (aufwändige Präparation)

→ sehr gute Ortsauflösung, erlaubt Beobachtung dynamischer Prozesse

Ursprung der Domänen

Die Ausbildung der Domänenstruktur beruht auf der Minimierung verschiedener im ferromagnetischen Zustand auftretenden Energiebeiträge:

- Austauschenergie (isotrop) – s.u.
- Anisotropieenergie (Magnetisierung entlang bevorzugter Kristallachsen)
- magnetische Energie $E_B \sim \int B^2 dV$ (Streufeld)

Die folgende Abbildung veranschaulicht die Reduzierung der magnetischen Energie infolge Ausbildung von Domänenstrukturen:

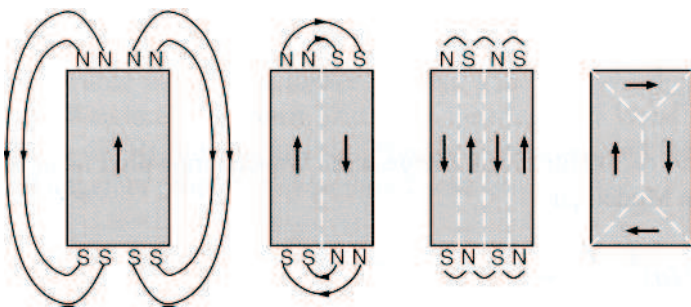


Abb. 5.23: Entstehung von ferromagnetischen Domänen [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.33].

- (a) eindomäniger Zustand:
die magnetischen "Pole" an den Stirnflächen bewirken maximale magnetische Energie $E_{B,1}$
- (b) 2-domäniger Zustand:
Aufteilen des Kristalls in zwei Domänen entgegengesetzter Magnetisierung \Rightarrow
 $E_B \approx E_{B,1}/2$
- (c) N -domäniger Zustand:
 $\Rightarrow E_B \approx E_{B,1}/N$
- (d),(e) Zustand mit **Abschlussdomänen**:
Magnetisierung dreht an den Domänengrenzen der Abschlussdomänen um 90° .
 \rightarrow die magnetischen Feldlinien sind innerhalb des Kristalls geschlossen
 \rightarrow kein äußeres Streufeld $\Rightarrow E_B = 0$

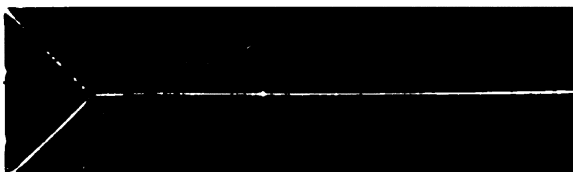


Abb. 5.24: Abschlußdomäne eines einkristallinen Whiskers aus Eisen. Die Stirnfläche ist eine (100)-Ebene; die Achse des Whiskers ist [001] [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.34].

Magnetische Wechselwirkung

Im folgenden diskutieren wir die mikroskopischen Ursachen für die spontane Ausrichtung der magnetischen Momente im magnetisch geordneten Zustand.

Entscheidend ist, dass wir – anders als bei dem Dia- oder Paramagnetismus – eine Beschreibung mit Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten benötigen → die Ausbildung magnetischer Ordnung ist ein **kollektives** Phänomen!

• Wechselwirkung zwischen magnetischen Dipolen

Einfachste Erwartung:

Die magnetische Wechselwirkung zwischen diskreten magnetischen Momenten kommt über die Wechselwirkung mit den magnetischen Dipolfeldern zustande.

Um dies zu überprüfen schätzen wir die Wechselwirkungsenergie zweier magnetischer Dipole im Abstand \vec{r} ab:

Für das Feld eines magnetischen Dipols \vec{m} gilt

$$\vec{B}_{\text{Dipol}} = \mu_0 \frac{3(\vec{m}\vec{r})\vec{r} - r^2\vec{m}}{r^5} \quad (5.40)$$

unter Vernachlässigung der Winkelabhängigkeit, und bei einem typischen Gitterabstand $r = 3\text{\AA}$ und einer typischen Größe des atomaren Moments μ_B ist dann

$$B_{\text{Dipol}} \sim \mu_0 \frac{\mu_B}{r^3} \sim 4\pi \cdot 10^{-7} \frac{\text{Vs}}{\text{Am}} \cdot \frac{10^{-23} \text{Am}^2}{(3 \cdot 10^{-10})^3 \text{m}^3} \sim 0.5 \text{ T} \quad (5.41)$$

Die magnetische Energie eines zweiten Moments der Größenordnung μ_B mit diesem Abstand beträgt damit

$$E = \mu_B B \sim \mu_0 \frac{\mu_B^2}{r^3} \sim 10^{-23} \text{Am}^2 \cdot 0.5 \text{ T} \sim 5 \cdot 10^{-24} \text{ J} \sim 3 \cdot 10^{-5} \text{ eV} \quad (5.42)$$

Diese Wechselwirkungsenergie ist sehr klein und entspricht einer Ordnungstemperatur $E/k_B \sim 0.3 \text{ K} \Rightarrow$ viel zu schwach! (Ordnungstemperaturen oft einige 100 K)

Anmerkungen:

- zwar kann die magnetische Dipolwechselwirkung nicht für die Ausbildung einer magnetischen Ordnung verantwortlich sein.
Sie spielt jedoch eine wichtige Rolle bei der Bildung magnetischer Domänen
- im allgemeinen kann auch die Spin-Bahn-Wechselwirkung als wesentliche Ursache magnetischer Kopplung ausgeschlossen werden. Sie führt jedoch zu einer Anisotropie der magnetischen Wechselwirkung. Die daraus resultierende Anisotropieenergie spielt ebenfalls eine Rolle bei der Domänenbildung.

als wesentliche Ursache für magnetische Ordnung betrachten wir nun die

- **”Austauschwechselwirkung”**

Die Austauschwechselwirkung (AWW) hat einen rein elektrostatischen Ursprung und ist nur quantenmechanisch erklärbar.

Man unterscheidet verschiedene Typen von Austauschwechselwirkungen

- **direkte AWW:**
Sie ist bestimmt durch Überlapp-Integrale der Wellenfunktionen der beteiligten magnetischen Ionen → sehr kurzreichweitig
- **indirekte AWW:**
sie ist häufiger realisiert als die direkte AWW, da sie eine längere Reichweite besitzt.
Drei wichtigste Kopplungsmechanismen:
 - **RKKY-Wechselwirkung**⁴ für Metalle
 - **Superaustausch** für Isolatoren
 - **Doppelaustausch** für einige ”schlechte” Leiter

Alle diese Wechselwirkungen führen letztlich auf dieselbe Operatorform des Modell-Hamilton-Operators → **Heisenberg-Modell**

Bis heute gibt es keine abgeschlossene Theorie des Magnetismus welche die **Gesamtheit** aller Phänomene einheitlich beschreibt

Modellvorstellungen:

verschiedene Modelle beziehen sich jeweils nur auf spezielle Erscheinungsformen des Magnetismus.

Gemeinsamer **Ausgangspunkt** sind zwei generelle Voraussetzungen für kollektiven Magnetismus:

- Festkörper
- permanente magnetische Momente

Sinnvollerweise unterscheidet man zwischen dem Magnetismus der Isolatoren und der Metalle:

⁴benannt nach einem Modell von Ruderman, Kittel, Kasuya und Yosida

(a) Isolatoren:

Magnetismus wird bewirkt von **lokalisierten** magnetischen Momenten aus einer unvollständig gefüllten Elektronenschale

z.B. $3d$ -, $4d$ -, $4f$ -, $5f$ -Schalen

Beispiele:

ferro:

CrBr₃

K₂CuF₄

EuO, Eus

CdCr₂Se₄

Rb₂CrCl₄

antiferro:

EuTe, MnO

RbNmF₃

Rb₂MnCl₄

ferri:

EuSe

Für diese Materialien liefert das **Heisenberg-Modell** eine gute Beschreibung:

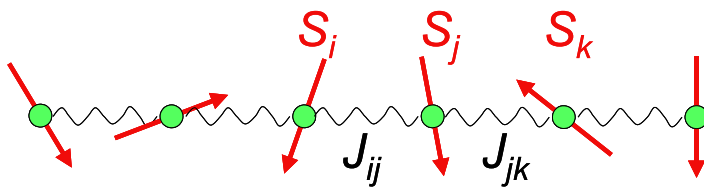


Abb. 5.25: Heisenbergmodell

Die Austauschwechselwirkung wird beschrieben durch einen Zusatzterm im Hamilton-Operator

$$\mathcal{H}_f = - \sum_{i,j} J_{i,j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (5.43)$$

Hierbei sind $J_{i,j}$ sogenannte **Austauschintegrale** deren Größe die Stärke der Kopplung der Spinmomente \vec{S}_i beschreibt.

Der Heisenberg-Hamilton-Operator \mathcal{H}_f ist ein *effektiver* Operator, d.h. er 'simuliert' den Beitrag der Austauschmatrixelemente der Coulomb-Wechselwirkung.

Austauschintegral aus Symmetriebetrachtung:

Fermionen \rightarrow total antisymmetrische Wellenfunktion

(folgt aus der relativistischen Quantenmechanik, Dirac-Gleichung)

Betrachte zwei Teilchen 1 und 2, mit je Spin $\frac{1}{2}$:

$$\text{Spin 0} : \quad \frac{1}{\sqrt{2}} (|\downarrow\uparrow\rangle - |\uparrow\downarrow\rangle) \cdot \text{symmetrische Ortsfunktion } |\psi_1(\vec{r}_1)\psi_2(\vec{r}_2)\rangle$$

$$\text{Spin 1} : \quad |\uparrow\uparrow\rangle \cdot \text{antisym. Ortsfunktion } \frac{1}{\sqrt{2}} (|\psi_1(\vec{r}_1)\psi_2(\vec{r}_2)\rangle - |\psi_1(\vec{r}_2)\psi_2(\vec{r}_1)\rangle)$$

Erwartungswert der Coulomb-Energie $\frac{e^2}{r_{12}}$ für Spin 0:

$$E_0 = \left\langle \psi_1(\vec{r}_1)\psi_2(\vec{r}_2) \left| \frac{e^2}{r_{12}} \right| \psi_1(\vec{r}_1)\psi_2(\vec{r}_2) \right\rangle$$

Erwartungswert der Coulomb-Energie $\frac{e^2}{r_{12}}$ für Spin 1:

$$E_1 = \left\langle \psi_1(\vec{r}_1)\psi_2(\vec{r}_2) \left| \frac{e^2}{r_{12}} \right| \psi_1(\vec{r}_1)\psi_2(\vec{r}_2) \right\rangle - \underbrace{\left\langle \psi_1(\vec{r}_2)\psi_2(\vec{r}_1) \left| \frac{e^2}{r_{12}} \right| \psi_1(\vec{r}_2)\psi_2(\vec{r}_1) \right\rangle}_{\text{“Austauschintegral” } J_{12}}$$

$$\Rightarrow E_1 - E_0 = -J_{12}$$

Lässt sich darstellen durch Hamilton-Operator $\mathcal{H}_f = -2J_{12}\vec{S}_1\vec{S}_2$ (Heisenberg-Modell), mit dem Spinmatrizen \vec{S}_1, \vec{S}_2

\Rightarrow **Austauschwechselwirkung = Coulombabstoßung + Fermi-Statistik**

$$\text{Größenordnung } \frac{e^2}{3\text{\AA}} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sim e \cdot \frac{1.6 \cdot 10^{-19}\text{As}}{3 \cdot 10^{-10}\text{m}} \cdot 9 \cdot 10^9 \frac{\text{Vm}}{\text{As}} \sim 5\text{eV} \triangleq 5 \cdot 10^4\text{K}$$

(real: $10 \dots 10^3\text{K}$)

- $J > 0 \rightarrow$ ferromagnetische Ordnung
- $J < 0 \rightarrow$ antiferromagnetische Ordnung

• **zur indirekten Austauschwechselwirkung**

- **Rudermann-Kittel-Kasuga-Yoshida-Wechselwirkung:**
die Wechselwirkung zwischen lokalisierten magnetischen Momenten der Gitteratome erfolgt durch **polarisierte Leitungselektronen**
hier: Vorzeichen von J wechselt periodisch
mit Abstand zwischen lokalisierten Momenten
- **”Superaustausch”:**
via Zwischenion bei ionischer oder kovalenter Bindung – z.B. in MnO
meist $J < 0 \rightsquigarrow$ AFM Ordnung
- **Doppelaustausch:**
ist verknüpft mit Ladungstransfer – z.B. in gemischt-valenten Manganaten
 $J > 0 \rightsquigarrow$ FM Ordnung

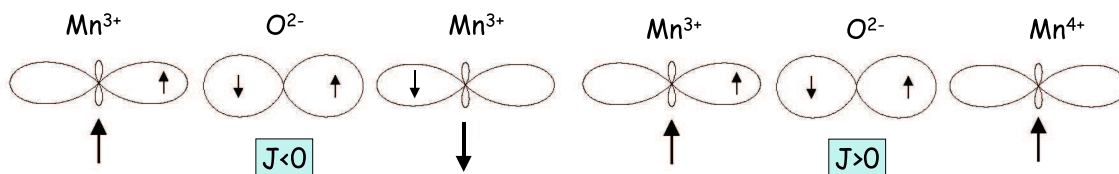


Abb. 5.26: **Links:** Superaustausch; **Rechts:** Doppelaustausch

• zur Anisotropieenergie

Die bislang betrachtete Austauschwechselwirkung ist isotrop.

Man beobachtet jedoch typischerweise in ferromagnetischen Kristallen Richtungen **leichter** und **schwerer Magnetisierung**

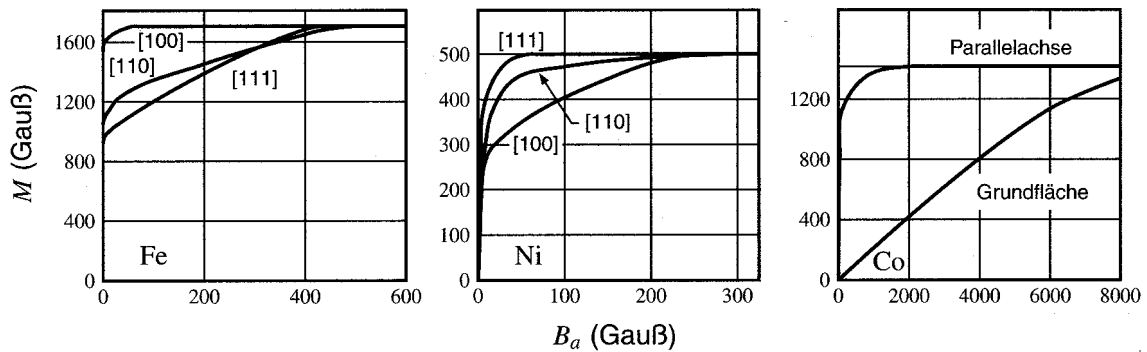


Abb. 5.27: Magnetisierungskurven für Einkristalle aus Fe, Ni und Co. Die Kurven für Fe zeigen, dass [100] die Richtung leichter Magnetisierung ('easy axis') und [111] die magnetisch "harte" Richtung ist [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.30].

Diese Beobachtungen sind Ausdruck der **Anisotropieenergie**.

Ihre Ursache liegt in der Asymmetrie der Ladungsverteilung infolge Spin-Bahn-WW.

Die Asymmetrie ist mit der Richtung des Spins verbunden

⇒ eine Drehung der Spinrichtung relativ zu den Kristallachsen ändert den Überlapp des räumlichen Anteils der Wellenfunktionen

⇒ Änderung der Austauschenergie

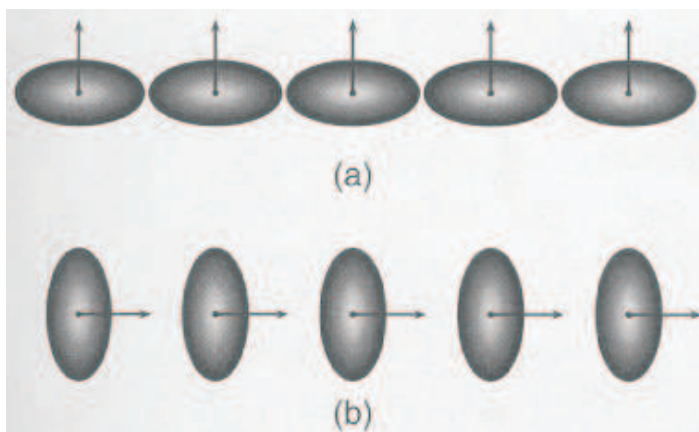


Abb. 5.28: Asymmetrie des Überlapps der Elektronenverteilung benachbarter Atome. [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.31].

Anmerkung:

die Asymmetrie der Ladungsverteilung bewirkt auch eine Asymmetrie im Streuquerschnitt für die Streuung von Leitungselektronen.

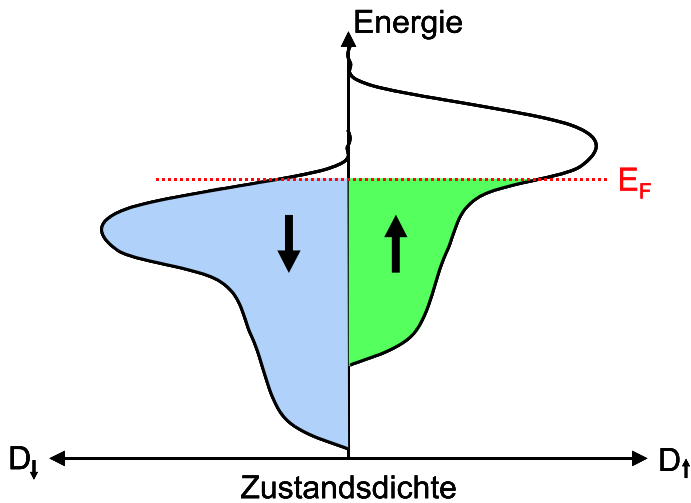
⇒ elektrischer Widerstand hängt von der Richtung der Magnetisierung relativ zur Stromrichtung ab

→ anisotroper Magnetwiderstand (AMR)

(b) Metalle:

(b.1) Bandmagnetismus:

Hier bewirkt die AWW (bei $T < T_c$) eine **spinabhängige Bandverschiebung**



Charakteristisch für diese Klasse ist, dass dieselben Bandelektro- nen sowohl für den elektrischen Transport als auch für den Ma- gnetismus verantwortlich sind.

Abb. 5.29: Bandmagnetismus: Auf- spaltung der Zustandsdichte in \uparrow - und \downarrow -Zustände infolge der Aus- tauschwechselwirkung

Typische Materialien: Fe, Co, Ni und deren Verbindungen

→ (delokalisierte) s - und d -Elektronen tragen zum Magnetismus bei.

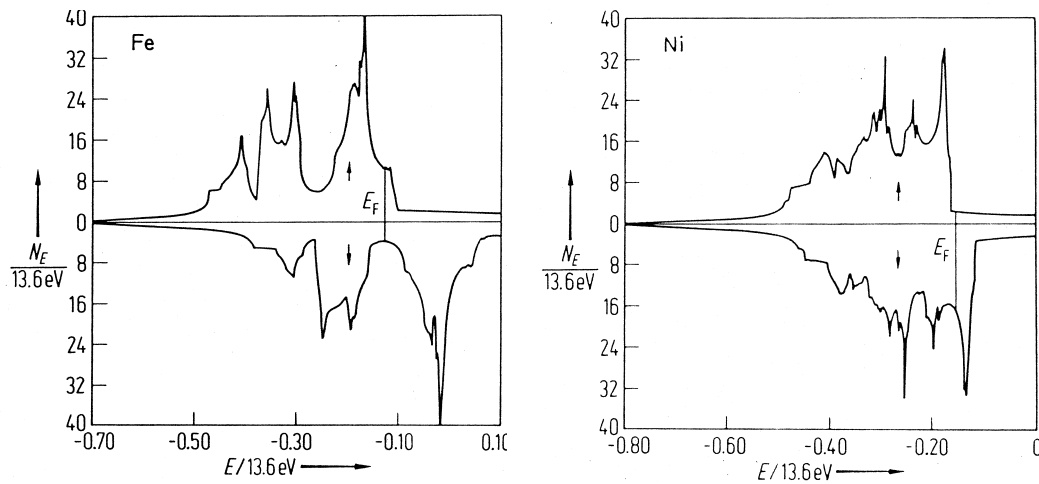


Abb. 5.30: Berechnete Elektronische Zustandsdichte $N_E(E)$ der d - und s -Elektronen für Fe (a) und Ni (b) im ferromagnetischen Zustand [aus Bergmann-Schaefer, *Lehrbuch der Experimentalphysik* (1992); Abb.8.19].

Fe: "↑" überwiegt an E_F

Ni: fast nur "↓" an E_F → sehr große "Spinpolarisierung" (\sim Differenz der Zu- standsdichten bei E_F) der Ladungsträger

(Einfachste) theoretische Beschreibung \rightarrow **Hubbard-Modell:**

Das Hubbard-Modell reduziert die (große) Menge an gebundenen elektronischen Niveaus und Kontinuumsniveaus eines jeden Atomrumpfes auf ein einziges lokalisiertes Bahnorbital

Die Zustände sind festgelegt durch vier mögliche Konfigurationen eines jeden Atomrumpfes:

- (a) Niveau ist leer
- (b) Niveau ist mit einem Elektron mit Spin σ besetzt
- (c) Niveau ist mit einem Elektron mit Spin $-\sigma$ besetzt
- (d) Niveau ist mit zwei Elektronen besetzt mit antiparallelen Spins

Dies liefert folgenden Hamilton-Operator:

$$\mathcal{H}_s = \underbrace{\sum_{ij\sigma} T_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma}}_{\mathcal{H}_T} + \frac{1}{2} U \underbrace{\sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i-\sigma}}_{\mathcal{H}_U} \quad \text{mit} \quad n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \quad (5.44)$$

Hierbei sind

- $c_{i\sigma}^\dagger$: Erzeugungsoperator eines Elektrons
mit Spin σ am Gitterplatz \vec{r}_i
- $c_{j\sigma}$: Vernichtungsoperator eines Elektrons
mit Spin σ am Gitterplatz \vec{r}_j
- T_{ij} : "hopping"-Integral

Der erste Term \mathcal{H}_T auf der rechten Seite in (5.44) beschreibt den Energiebeitrag aufgrund der Bewegung eines Elektrons unter Spinerhaltung zu einem Nachbaratom. T_{ij} berücksichtigt das Gitterpotential

Der zweite Term \mathcal{H}_U auf der rechten Seite in (5.44) liefert einen Energiebeitrag aufgrund des Spinflips von zwei Elektronen die gemeinsam ein atomares Niveau besetzen (Konfiguration (d)).

Dieser berücksichtigt lediglich die intraatomare Coulomb-Wechselwirkung

Falls $U \rightarrow 0$:

\mathcal{H}_T liefert konventionelles Bandspektrum mit über den gesamten Kristall verteilten Ein-Elektron-Bloch-Niveaus
 \rightarrow nicht-magnetisches Metall

Falls $T \rightarrow 0$:

\mathcal{H}_U begünstigt Ausrichtung der lokalisierten Momente
 \rightarrow ferromagnetischer Isolator

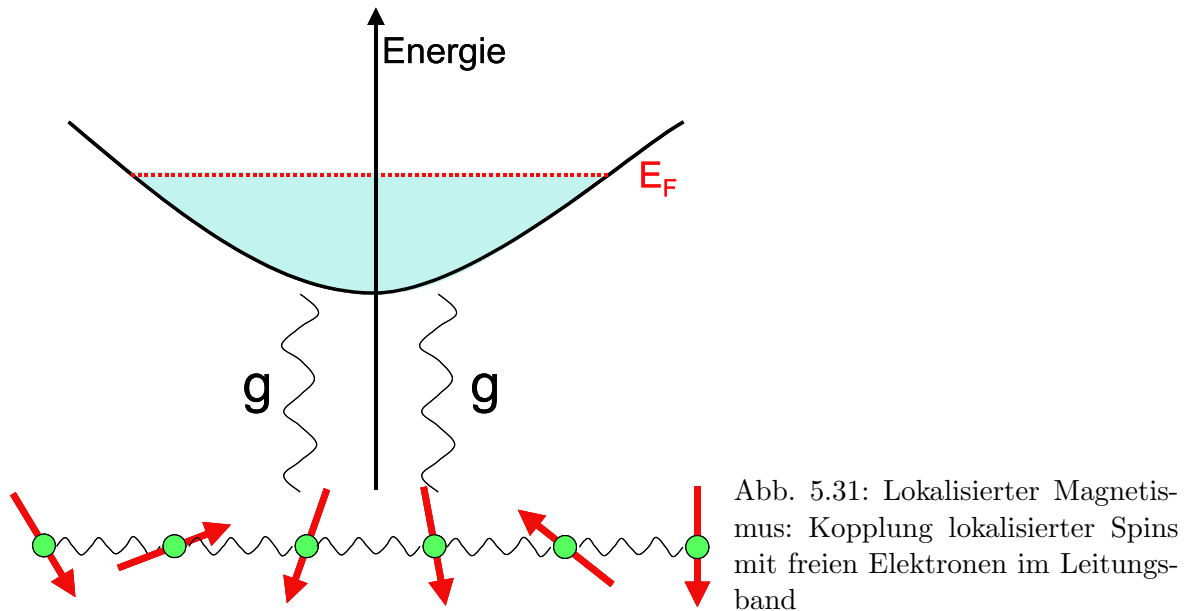
Falls gleichzeitig $T \neq 0$ und $U \neq 0$ ist keine exakte Lösung möglich;

erlaubt jedoch Betrachtung einiger interessanter Spezialfälle:

Z.B. für $U \gg T$ ergibt sich ein Heisenbergscher Spin-Operator mit Austauschkonstanten $|J| = 4T^2/U$.

(b.2) "lokalisierter Magnetismus:

Magnetismus und elektrischer Strom werden von **verschiedenen** Elektronengruppen getragen,
z.B. in metallischen $4f$ -Systemen wie Gd.



Liefert das **s-f(s-d) Modell**

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_f + \mathcal{H}_s - g \sum_i \vec{\sigma}_i \cdot \vec{S}_i \quad (5.45)$$

Hierbei ist

- $\vec{\sigma}_i$ der Spinoperator des Leitungselektrons am Ort \vec{r}_i
- \vec{S}_i ein lokalisierter Spin

• Austauschfeld

Die Bestimmung der Abhängigkeit der Magnetisierung M von der magnetischen Flussdichte B erfordert im Rahmen des Heisenberg-Modells die Lösung des Eigenwertproblems für den Operator \mathcal{H}_f (mit dem Zusatzterm $(g_J\mu_B/\hbar)B\sum_i S_i^z$ für die Energie im Magnetfeld)

Als entscheidende Vereinfachung des Problems ersetzt man in der **Molekularfeldnäherung** die Austauschwechselwirkung (erfordert Summation über alle Spins) durch ein effektives Magnetfeld, welches zur magnetischen Ordnung führt. Dieses Feld nennt man **Austauschfeld**.

Auf diese Weise reduziert sich das Vielspin-Problem auf ein Einzelspin-Problem.

Beschreibe den mittleren Einfluß (AWW) aller Spins auf den n -ten Spin durch ein (gemittelt) Austauschfeld⁵

$$\vec{B}_E = \lambda\mu_0\vec{M} \quad (5.46)$$

D.h. wir nehmen an, dass $\vec{B}_E \propto \vec{M}$,⁶ λ ist hierbei eine T -unabhängige Konstante.

D.h. jeder Spin sieht die mittlere Magnetisierung aller anderen Spins (eigentlich sind nur die Spins der nächsten Nachbarn relevant).

Typische Werte: $B_E \sim 1000 \text{ T} \gg B_{dipol}$ für Eisen.

Curie-Temperatur:

oberhalb der Curie-Temperatur T_c verschwindet die magnetische Ordnung aufgrund thermischer Fluktuationen

→ T_c hängt also von der Stärke des Austauschfeldes ab und sollte daher von λ abhängen.

In der paramagnetischen Phase ($\chi = \chi_p \ll 1 \Rightarrow \mu_0\vec{M} \approx \chi_p\vec{B}$) gilt

$$\mu_0\vec{M} = \chi_p(\vec{B}_{ext} + \vec{B}_E) \quad (5.47)$$

mit dem Curie-Gesetz $\chi_p = C/T$ und $B_E = \lambda\mu_0M$ aus (5.46) folgt

$$\mu_0MT = C(B_{ext} + \lambda\mu_0M) \Leftrightarrow \mu_0M(T - C\lambda) = CB_{ext} \quad (5.48)$$

Dies eingesetzt in den Ausdruck für die Suszeptibilität $\chi = M/H = \mu_0M/B_{ext}$ liefert

$$\chi = \frac{\mu_0M}{B_{ext}} = \frac{C}{T - C\lambda} \equiv \frac{C}{T - T_c} \quad \text{”Curie-Weiß-Gesetz”} \quad (5.49)$$

mit der Curie – Temperatur $T_c \equiv C \cdot \lambda$

→ Suszeptibilität $\frac{C}{T - T_c}$ wird singularär bei $T_c = C\lambda$

unterhalb T_c : spontane Magnetisierung (vgl. Ferroelektrizität)

⁵auch *Weiß-Feld* genannt, nach P. Weiß. Taucht in Ausdrücken für Energie $-\vec{\mu} \cdot \vec{B}_E$ oder Drehmoment $\vec{\mu} \times \vec{B}_E$ auf – nicht aber in den Maxwell-Gleichungen. \vec{B}_E ist typischerweise 10^4 mal größer als das mittlere Magnetfeld der magnetischen Dipole eines Ferromagneten.

⁶Falls Domänen mit unterschiedlicher Orientierung der Magnetisierung vorliegen ist die Magnetisierung innerhalb einer Domäne gemeint.

genauere Rechnung für T nahe T_c :

$$\chi \propto \frac{1}{(T - T_c)^\gamma} \quad \text{mit } \gamma = 1.33 \text{ für } T \rightarrow T_c \text{ "von oben"}$$

$$\chi \propto (T_c - T)^\beta \quad \text{mit } \beta = 1/2 \text{ für } T \rightarrow T_c \text{ "von unten"}$$

Experimentelle Werte für γ, β, T_c

| Material | γ | β | T_c [K] |
|------------------|----------|---------|-----------|
| Fe | 1.33 | 0.34 | 1043 |
| Co | 1.21 | - | 1388 |
| Ni | 1.35 | 0.42 | 627 |
| Gd | 1.3 | - | 293 |
| CrO ₂ | 1.63 | - | 387 |

Tabelle 5.3: Exponenten für Ferromagneten am kritischen Punkt [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999) Tab.15.1].

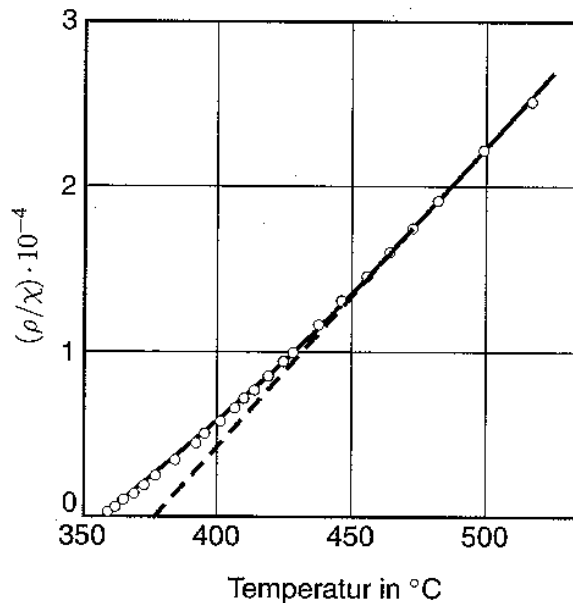


Abb. 5.32: Kehrwert der Suszeptibilität pro Gramm von Ni in der Nähe der Curie-Temperatur (385°C). ρ ist die Dichte. Die gestrichelte Linie entspricht der linearen Extrapolation aus dem hohen Temperaturbereich. [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.3].

Aus $T_c = C \cdot \lambda$ und der Definition (5.34) der Curie-Konstanten $C = Np^2\mu_B^2\mu_0/3k_B$ (mit $p^2 = g^2S(S+1)$) folgt

$$\lambda = \frac{T_c}{C} = \frac{3k_B T_c}{N g^2 S(S+1) \mu_B^2 \mu_0} \quad (5.50)$$

Damit läßt sich λ aus der gemessenen Curie-Temperatur abschätzen.

Bsp. Eisen: $T_c \approx 10^3$ K, $g \approx 2$, $S \approx 1 \Rightarrow \lambda \approx 5000$.

Mit der Sättigungsmagnetisierung $\mu_0 M_S \approx 0.17$ T folgt $B_E \approx \lambda \mu_0 M_S \approx 10^3$ T

Zusammenhang zwischen J und T_c :

mit Molekularfeldtheorie + Berücksichtigung nur nächster Nachbarn:

$$J = \frac{3k_B T_c}{2zS(S+1)} \quad \text{Für Eisen: } J \sim 12 \text{ meV}$$

z ist die Zahl der nächsten Nachbarn

Temperaturabhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung ($T < T_c$)

Mit denselben Überlegungen wie oben liefert die Molekularfeldnäherung auch eine Beschreibung der Magnetisierung im ferromagnetischen Zustand; liefert insbesondere die T -Abhängigkeit von M_s .

- Prinzip:*
- nehme Brillouin-Funktion für Paramagnet
 - Ersetze $B \rightarrow B_E = \lambda\mu_0 M$

Für Spin $\frac{1}{2}$:

$$M = N\mu \tanh \frac{\mu\lambda\mu_0 M}{k_B T} \quad (5.51)$$

Diese Gleichung für M besitzt Lösungen mit $M \neq 0$ für $0 < T < T_c$.

Normierung mit reduzierter Magnetisierung $m \equiv M/N\mu$ und reduzierter Temperatur $t \equiv k_B T/N\mu^2\lambda\mu_0$ ergibt

$$m = \tanh \frac{m}{t} \quad (5.52)$$

Lösung graphisch (s.u.) oder numerisch

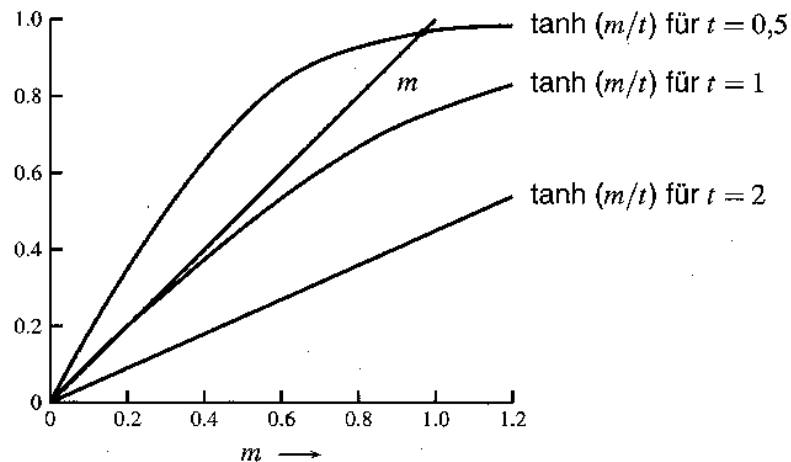


Abb. 5.33: Graphische Lösung der Gleichung (5.52) für die reduzierte Magnetisierung m als Funktion der reduzierten Temperatur t . Die linke Seite von (5.52) ist als Gerade mit Steigung 1 eingezeichnet. Die rechte Seite von ((5.52)) ist für drei Temperaturwerte $t = T/T_c = 0.5, 1, 2$ dargestellt. [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.3].

Lösungen für m sind Schnittpunkte der Geraden mit der Funktion $\tanh(m/t)$ (aufgetragen vs. m für jeweils festes t).

Für reduzierte Temperaturen $t > 1$:
Schnittpunkt nur bei $m = 0 \rightarrow$ paramagnetische Phase

Für reduzierte Temperaturen $t < 1$:
Schnittpunkt bei $m \neq 0 \rightarrow$ liefert Sättigungsmagnetisierung für jeweiliges t
 \rightarrow ferromagnetische Phase.

$$\Rightarrow t = T/T_c$$

Mit sinkender Temperatur wandert der Schnittpunkt nach oben bis zu $m = 0$ bei $t = 0$.

Damit liefert die Molekularfeldnäherung eine Beschreibung der T -Abhängigkeit der Magnetisierung (s. Abbildung unten).

Mit sinkender Temperatur steigt M_s unterhalb von T_c stetig an
 → Phasenübergang 2. Ordnung

Die Abbildung zeigt eine gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten an Nickel.

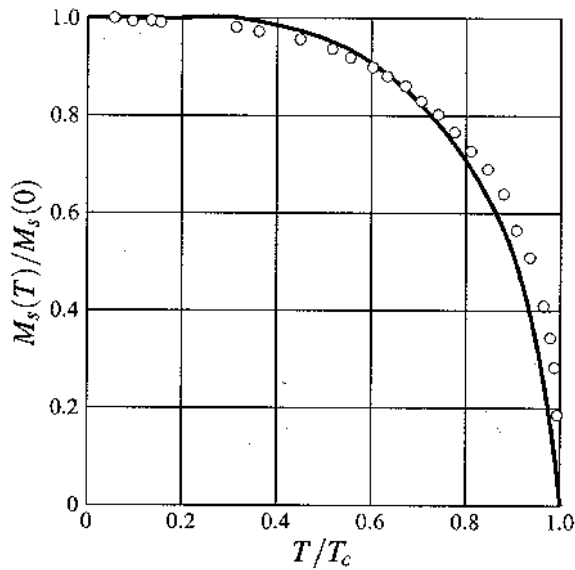


Abb. 5.34: Sättigungsmagnetisierung von Nickel als Funktion der Temperatur; die theoretische Kurve ergibt sich für $S = \frac{1}{2}$ aus der Molekularfeldnäherung. Die experimentellen Daten stammen von P.Weiß und G.Forrer [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.4].

• Ferrimagnetische Ordnung



- Kristallstruktur: "Spinell" (MgAl_2O_4)

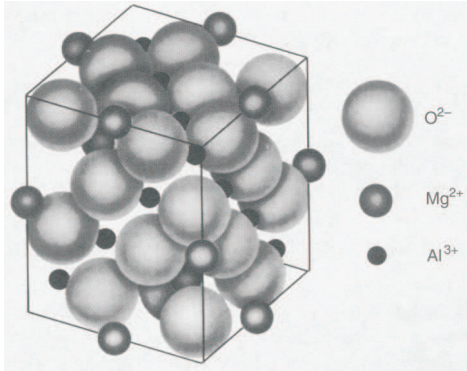


Abb. 5.35: Kristallstruktur des Minerals Spinell MgAl_2O_4 . Die Mg^{2+} -Ionen sitzen an den Ecken eines Tetraeders, und jedes ist von vier O^{2-} -Ionen umgeben. Die Al^{3+} -Ionen besetzen die Ecken eines Oktaeders und sind jeweils von sechs O^{2-} -Ionen umgeben [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.17].

- Fe-Ionen sitzen auf unterschiedlichen Gitterplätzen:
 Fe^{3+} auf Tetraederplätzen A und Oktaederplätzen B
 Fe^{2+} nur auf Oktaederplätzen B

Einfache Überlegung zur Ausrichtung der Momente:

- Fe^{3+} -Ionen besitzen Spin $S = 5/2$ und $L = 0 \rightarrow$ jedes Ion sollte $5\mu_B$ zum Sättigungsmoment beitragen.
 - Fe^{2+} -Ionen besitzen Spin $S = 2 \rightarrow$ sollten $4\mu_B$ zum Sättigungsmoment beitragen.
- \Rightarrow Zahl der effektiven Magnetonen sollte je Elementarzelle ca. $2 \cdot 5 + 4 = 14$ sein.

Experimentelle Beobachtung:

Die Sättigungsmagnetisierung ist wesentlich kleiner als erwartet und entspricht einem Wert der effektiven Magnetonen von 4.1.

Erklärung (durch Neutronenstreuung bestätigt):

Die Momente der Fe^{3+} -Ionen stehen **antiparallel**

Die beobachtete Sättigungsmagnetisierung resultiert aus der parallelen Ausrichtung der Fe^{2+} -Ionen

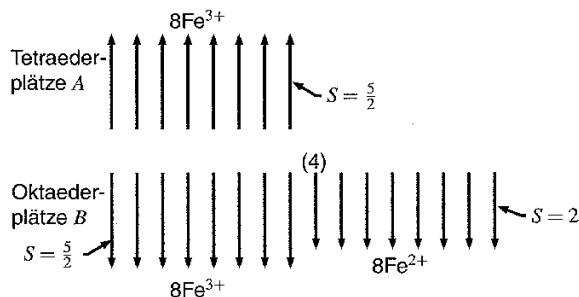


Abb. 5.36: Spinanordnung in Magnetit, $\text{FeO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$. Die Momente der Fe^{3+} -Ionen heben sich gegenseitig auf, nur die Momente der Fe^{2+} -Ionen bleiben übrig [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.16].

Austauschintegrale:

→ Drei Austauschintegrale: J_{AA}, J_{AB}, J_{BB} . Es zeigt sich: Alle sind < 0 .

⇒ $\downarrow\uparrow$ -Spinorientierung ist günstig

$J_{AB} \gg J_{AA}, J_{BB}$ ⇒ günstigste Energie, wenn A-Spins **antiparallel** ($\downarrow\uparrow$) zu B-Spins
 ⇒ Spins innerhalb der A- und B-Plätze stehen **parallel** ($\uparrow\uparrow$),
 bilden also jeweils ein ferromagnetisches Untergitter

→ **ferrimagnetische Ordnung**

Typische chemische Formel eines Ferrits: $MO \cdot Fe_2O_3$

mit $M = 2$ -wertiges Kation (z.B. Zn, Cd, Fe, Ni, Cu, Co, Mg)

oder

Granate, z.B. Eisengranate $M_3Fe_5O_{12}$;

hierbei ist M ein 3-wertiges Metallion, z.B. Y in $Y_3Fe_5O_{12} = YIG$

oder andere seltenen Erden (Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Yb)

Anwendung von Ferrimagneten:

viele Ferrimagnete besitzen eine hohe Permeabilität, kleines Koerzitivfeld und insbesondere einen hohen elektrischen Widerstand

→ günstig für HF- und Mikrowellenanwendungen (geringe Verluste),
 insbes. als Ringkerne für HF-Transformatoren

Quantitativ:

Im folgenden zeigen wir im Rahmen der Molekularfeldnäherung wie drei antiferromagnetische Wechselwirkungen (beschrieben durch die negativen Austauschintegrale J_{AA}, J_{BB}, J_{AB}) zu ferrimagnetischer Ordnung führen können.

Austauschfeld für Spingitter:

$$\begin{aligned}\vec{B}_A &= -\lambda\mu_0\vec{M}_A - \mu\mu_0\vec{M}_B \\ \vec{B}_B &= -\mu\mu_0\vec{M}_A - \nu\mu_0\vec{M}_B\end{aligned}\quad (5.53)$$

mit $\lambda(J_{AA}), \mu(J_{AB}), \nu(J_{BB}) > 0$;

d.h. die Minuszeichen entsprechen antiferromagnetischer WW.

Die Energiedichte der Wechselwirkung ist

$$U = -\frac{1}{2}(\vec{B}_A\vec{M}_A + \vec{B}_B\vec{M}_B) = \frac{1}{2}\mu_0 \left(\lambda M_A^2 + 2\mu\vec{M}_A\vec{M}_B + \nu M_B^2 \right) \quad (5.54)$$

für $\mu M_A M_B > \frac{1}{2}(\lambda M_A^2 + \nu M_B^2) \Rightarrow M_A \downarrow\uparrow M_B$ besitzt niedrigste Energie ($U < 0$)

Andernfalls liefert die mögliche Lösung $M_A = M_B = 0$ die niedrigste Energie $U = 0$.

Curie-Temperatur und Suszeptibilität von Ferrimagneten

Wir betrachten analog zum Ferromagneten den paramagnetischen Bereich, d.h. gemäß (5.48) gilt $\mu_0 MT = C(B_{ext} + B_E)$

Für den Ferrimagneten definieren wir nun aber zwei verschiedene Curiekonstanten C_A, C_B für die Plätze A und B.

Zudem betrachten wir im Rahmen der Molekularfeldnäherung zur Vereinfachung nur eine antiparallele WW zwischen den Plätzen A und B,

d.h. $B_A = -\mu\mu_0 M_B$ und $B_B = -\mu\mu_0 M_A$

(entspricht der Annahme $J_{AB} < 0$ und $J_{AA} = J_{BB} = 0$).

Damit folgt

$$\begin{aligned} M_A T &= C_A \left(\frac{B_{ext}}{\mu_0} - \mu M_B \right) & \Leftrightarrow & T \cdot M_A + \mu C_A \cdot M_B = C_A \frac{B_{ext}}{\mu_0} \\ M_B T &= C_B \left(\frac{B_{ext}}{\mu_0} - \mu M_A \right) & & \mu C_A \cdot M_A + T \cdot M_B = C_B \frac{B_{ext}}{\mu_0} \end{aligned} \quad (5.55)$$

Falls das äußere Feld $B_{ext} = 0$ haben obige Gleichungen nur nichtverschwindende Lösungen für M_A und M_B wenn

$$\begin{vmatrix} T & \mu C_A \\ \mu C_B & T \end{vmatrix} = 0 \quad \Leftrightarrow \quad T^2 - \mu^2 (C_A C_B) = 0$$

Diese Bedingung legt die Curie-Temperatur fest: $T_c = \mu \sqrt{C_A C_B}$.

Die Auflösung von (5.55) nach M_A und M_B liefert die Suszeptibilität bei $T > T_c$:

$$\chi = \frac{M_A + M_B}{\mu_0 B_{ext}} = \frac{(C_A + C_B)T - 2\mu C_A C_B}{T^2 - T_c^2} \quad (5.56)$$

[im Ferromagneten fanden wir (5.49): $\chi = C/(T - T_c)$]

• Antiferromagnetische Ordnung

In einem Antiferromagneten sind die magnetischen Momente antiparallel ausgerichtet.

Ein klassischer Vertreter ist MnO:

Die Momente innerhalb einer einzelnen [111]-Ebene sind parallel angeordnet. Momente benachbarter Ebenen sind jedoch antiparallel ausgerichtet.

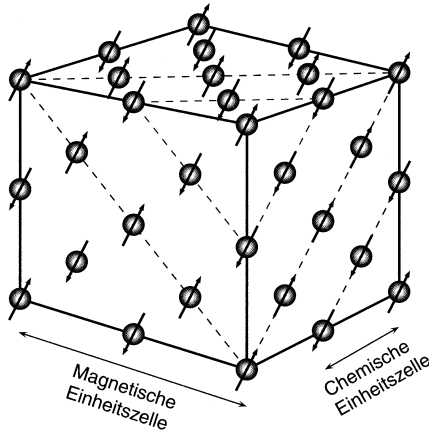


Abb. 5.37: Ordnungszustand der Spins von Mn^{2+} -Ionen in Manganoxid, MnO , nach Ergebnissen der Neutronenbeugung. Die O^{2-} -Ionen sind nicht eingezeichnet [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.21].

Die Temperatur unterhalb der die antiferromagnetische Ordnung auftritt bezeichnet man als **Néel-Temperatur T_N** .

Ein Antiferromagnet ist ein Spezialfall eines Ferrimagneten:

beide Untergitter A, B besitzen die gleiche Sättigungsmagnetisierung $\rightarrow C_A = C_B$.

Mit $C_A = C_B$ liefert (5.56) die paramagnetische Suszeptibilität

$$\chi = \frac{2CT - 2\mu C^2}{T^2 - (\mu C)^2} = \frac{2C}{T + \mu C} = \frac{2C}{T + T_N}; \quad T_N = \mu C \text{ "Néel-Temperatur"} \quad (5.57)$$

Experimentelle Beobachtungen:

- χ divergiert nicht bei T_N sondern hat ein nur schwach ausgeprägtes Maximum.
- $\chi(T) = 2C/(T + \Theta)$, wobei Θ/T_N oft deutlich größer als 1 ist.

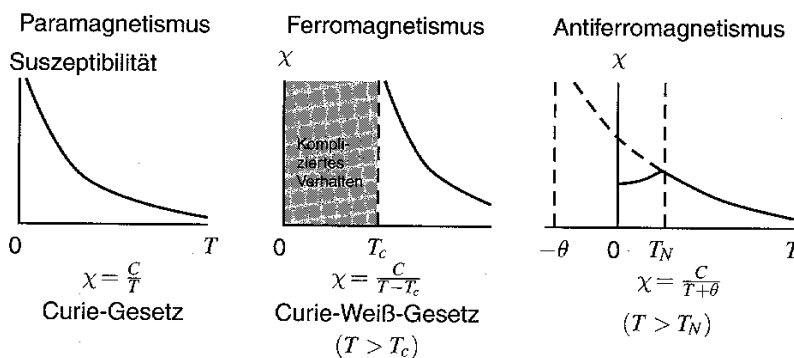


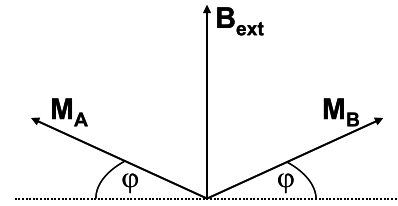
Abb. 5.38: Temperaturabhängigkeit der magnetischen Suszeptibilität von Paramagneten, Ferromagneten und Antiferromagneten [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.23].

antiferromagnetische Suszeptibilität für $T < T_N$

Einteilung in zwei Grenzfälle: $\vec{B}_{ext} \perp \vec{M}_A, \vec{M}_B$:

1.) $\vec{B}_{ext} \perp \vec{M}_A, \vec{M}_B$:

Äußeres Magnetfeld senkrecht zur Richtung der spontanen Magnetisierung der Untergitter, \rightarrow die Magnetisierungen \vec{M}_A, \vec{M}_B werden um Winkel φ in Richtung \vec{B}_{ext} gedreht.



Mit den Austauschfeldern $\vec{B}_A = -\mu\mu_0\vec{M}_B$ und $\vec{B}_B = -\mu\mu_0\vec{M}_A$ folgt unter der Annahme $|M_A| = |M_B| = M$ die Energiedichte bei angelegtem Feld \vec{B}_{ext}

$$\begin{aligned} U &= -\frac{1}{2}(\vec{B}_A \cdot \vec{M}_A + \vec{B}_B \cdot \vec{M}_B) - \vec{B}_{ext} \cdot (\vec{M}_A + \vec{M}_B) \\ &= \mu\mu_0\vec{M}_A \cdot \vec{M}_B - \vec{B}_{ext} \cdot (\vec{M}_A + \vec{M}_B) \\ &\approx -\mu\mu_0 M^2 \left[1 - \frac{1}{2}(2\varphi)^2 \right] - 2B_{ext}M\varphi \end{aligned} \quad (5.58)$$

(für kleine Auslenkungen $\cos(2\varphi) \approx 1 - (2\varphi)^2/2$ und $\sin \varphi \approx \varphi$)

$$\begin{aligned} \text{minimale Energie :} \quad \frac{dU}{d\varphi} &= 0 = 4\mu\mu_0 M^2 \varphi - 2B_{ext}M \\ \Rightarrow \varphi &= \frac{B_{ext}}{2\mu\mu_0 M} \\ \text{mit } |\vec{M}_A + \vec{M}_B| \approx 2M\varphi \Rightarrow \chi_{\perp} &\approx \frac{2\mu_0 M \varphi}{B_{ext}} = \frac{1}{\mu} = \text{const.} \end{aligned} \quad (5.59)$$

2.) Äußeres Magnetfeld parallel zur Ausrichtung der Momente: $\vec{B}_{ext} \parallel \vec{M}_A$

Die magnetische Energie ändert sich nicht wenn die Spinsysteme A und B gleiche Winkel mit der Feldrichtung bilden:

$$\chi_{\parallel} \rightarrow 0 \quad \text{für} \quad T = 0$$

Mit steigender Temperatur nimmt χ_{\parallel} bis hin zu T_N kontinuierlich zu.

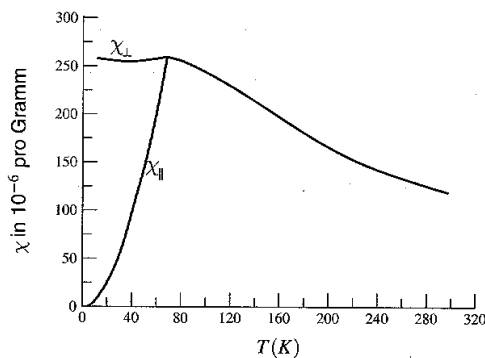


Abb. 5.39: Magnetische Suszeptibilität von MnF_2 , parallel und senkrecht zur tetragonalen Achse [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.25].

Magnetische Neutronenstreuung

Röntgenbeugung:

Photon "sieht" die räumliche Verteilung der Elektronenladungen im Kristall

Neutronenstreuung:

Das magnetische Moment des Neutrons wechselwirkt mit dem magnetischen Moment des Elektrons.

⇒ Neutron "sieht" (i) Verteilung der Kerne und

(ii) Verteilung der magnetischen Momente des elektronischen Systems

Wirkungsquerschnitt $\sigma_{n-e} \approx \sigma_{n-Kern}$

Unterscheidung zwischen Streuung an Kernen und an magnetischen Momenten:

1. Intensität der Kernstreuung kann bei hohen Streuwinkeln bestimmt werden
– dort wird die magnetische Streuung vernachlässigbar.
2. Unterdrückung der magnetischen Streuung durch Anlegen eines Magnetfeldes senkrecht zur Streuebene
3. Verwenden von polarisierten Neutronen + Drehung der Polarisation
⇒ Veränderung der Intensität kommt nur von der magnetischen Streuung

→ Methode liefert Verteilung, Richtung und Ordnung der magnetischen Momente.

Ermöglicht auch die Bestimmung der Größe verschiedener Momente in Verbindungen oder Legierungen.

Beispiel 1: ferromagnetische Ordnung

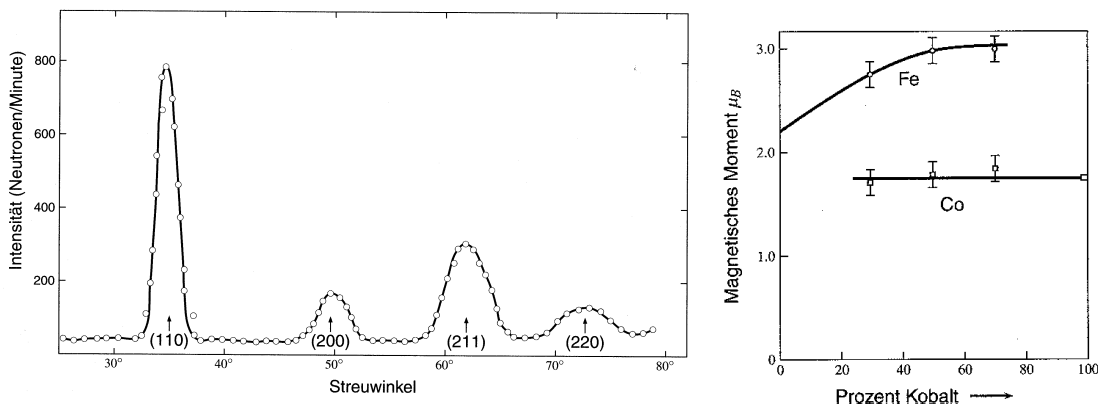


Abb. 5.40: **Links:** Neutronenbeugung an Eisen. **Rechts:** Magnetische Momente, die den $3d$ -Elektronen in Fe-Co-Legierungen zugeordnet werden können, als Funktion der Zusammensetzung [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.11,12].

Beispiel 2: antiferromagnetische Ordnung

MnO hat NaCl-Struktur und ordnet unterhalb $T_N = 116$ K antiferromagnetisch.

- bei Raumtemperatur ($T > T_N$):
die Beugungsreflexe entsprechen einer fcc-Einheitszelle mit Gitterkonstanten $a_0 = 4.44 \text{ \AA}$ \rightarrow (111)-Reflex bei $\sim 24^\circ$
- bei 80 K ($T < T_N$):
Reflexe entsprechen einer Gitterkonstanten $a = 8.85 \text{ \AA}$ \rightarrow (111)-Reflex bei $\sim 12^\circ$
Magnetische Einheitszelle hat verdoppelte Gitterkonstante \rightarrow antiferromagnetische Ordnung (siehe Abb. 5.37)

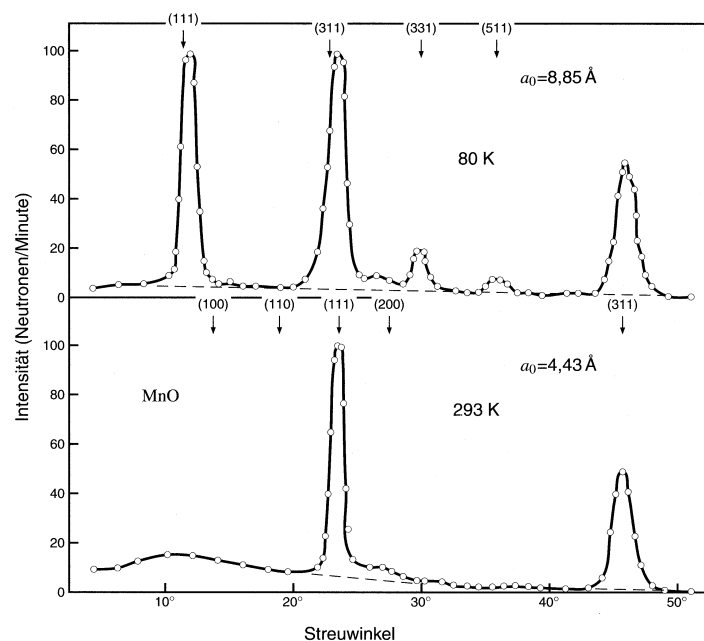


Abb. 5.41: Neutronenbeugungsaufnahme von MnO unterhalb und oberhalb der Spinordnungstemperatur bei 120K, nach C.G.Shull, E.O.Wollan und W.C.Koehler. Für die Reflexionsindizes wurde bei 80K eine 8.85Å-Elementarzelle und bei 293 eine 4.43Å-Elementarzelle zugrunde gelegt. Bei der höheren Temperatur sind die Mn^{2+} -Ionen noch magnetisch, aber nicht mehr geordnet [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.20].

Spinwellen (Magnonen)

Im folgenden betrachten wir eine 1-dimensionale Anordnung gekoppelter Spins ("Spin-Kette").

Der Grundzustand sei ferromagnetisch geordnet, d.h. alle Spins stehen parallel. (Abb. 5.42(a))

Wir fragen nach möglichen **Anregungen der Spinkette** aus dem Grundzustand. Dies führt zu sogenannten **Magnonen = quantisierte Spinwelle**.

Ziel:

- Herleitung der Dispersionsrelation $\omega(k)$ für Magnonen (klassisch – wie für Phononen)
- Herleitung der quantisierten Magnonen-Energie
→ Quantisierung entspricht Spinumklapp-Prozess

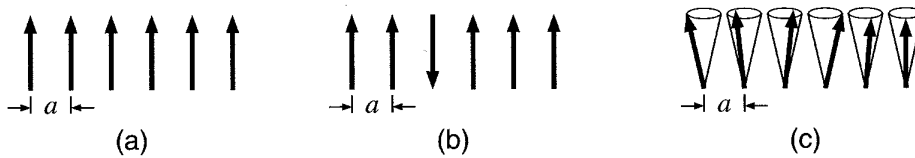


Abb. 5.42: (a) Grundzustand eines einfachen Ferromagneten im klassischen Bild; alle Spins stehen parallel. (b) Eine mögliche Anregung: ein Spin ist umgeklappt. (c) Die niedrigenergetischen, elementaren Anregungszustände sind Spinwellen. Dabei präzessieren die Spinvektoren auf Kegelmänteln, und aufeinanderfolgende Spins weisen eine Phasenvoreilung um einen konstanten Winkel auf. [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.8].

Betrachte N Spins \vec{S}_p ($p = 1 \dots N$) mit Betrag S (auf Geraden oder in Ring).

Die Kopplungsenergie nächster Nachbarn sei von der Heisenberg-Form

$$U = -2J \sum_{p=1}^N \vec{S}_p \cdot \vec{S}_{p+1} \quad (5.60)$$

($J > 0$: Austauschintegral; $\hbar\vec{S}_p$: Drehimpuls des Spins am Ort p)

Betrachte zur Vereinfachung \vec{S}_p als klassische Vektoren

⇒ im Grundzustand ist $\vec{S}_p \cdot \vec{S}_{p+1} = S^2$.

⇒ gesamte Austauschenergie der Kette ist $U_0 = -2NJS^2$.

Energie des ersten angeregten Zustands?

1) ein einzelner Spin ist umgeklappt (Abb.5.42(b)):

Nach (5.60) ist Anregungsenergie

$$\Delta U_1 = 8JS^2$$

2) kollektive Anregung (Spinwelle) → Abb. 5.42(c)

Magnonen = Schwingungen der Orientierung des Spinsystems

relativ zum Gitter
(Phononen = Schwingungen der Orte der Atome relativ zum Gitter)

feste Phasenbeziehung der "Auslenkung" der Spins

→ Anregung mit Wellencharakter mit Wellenvektor k und Schwingungsfrequenz ω

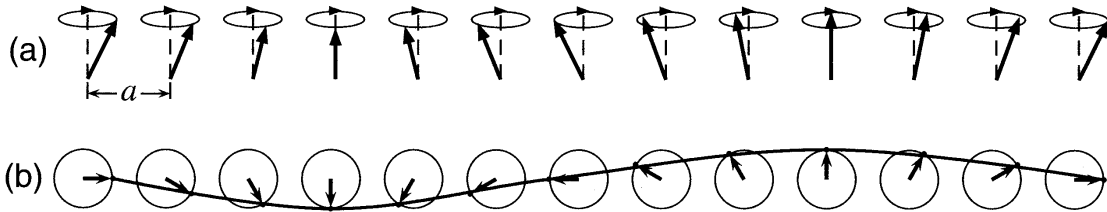


Abb. 5.43: Spinwelle in einer Kette von Spins. (a) Perspektivische Darstellung, (b) Spins von oben gesehen; eine Wellenlänge ist eingezeichnet; die Wellenlänge läuft durch die Spitzen der Spinvektoren [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.9].

Problemstellung: Finde Lösungen mit präzedierenden Spins;

→ Dispersionsrelation $\omega(k) = ?$

"klassische" Ableitung:

Terme in Austauschenergie (5.60) mit p -tem Spin:

$$U_p = -2J\vec{S}_p \cdot (\vec{S}_{p-1} + \vec{S}_{p+1}) \quad (5.61)$$

mit dem magnetischen Moment $\vec{\mu}_p = -g\mu_B\vec{S}_p$ am Ort p gilt

$$U_p = -\vec{\mu}_p \cdot \underbrace{\left[\frac{-2J}{g\mu_B} (\vec{S}_{p-1} + \vec{S}_{p+1}) \right]}_{\equiv \vec{B}_p} \quad (5.62)$$

d.h. mit dem **effektiven Austauschfeld**

$$\vec{B}_p \equiv \frac{-2J}{g\mu_B} (\vec{S}_{p-1} + \vec{S}_{p+1}) \quad (5.63)$$

das auf den Spin am Ort p wirkt.

Aus der klassischen Mechanik:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}(\text{Drehimpuls}) &= \text{Drehmoment} \\ \hbar\dot{\vec{S}}_p &= \vec{\mu}_p \times \vec{B}_p \\ &= 2J\vec{S}_p \times (\vec{S}_{p-1} + \vec{S}_{p+1}) \\ &= 2J \left(\vec{S}_p \times \vec{S}_{p-1} + \vec{S}_p \times \vec{S}_{p+1} \right) \end{aligned} \quad (5.64)$$

In kartesischen Komponenten:

$$\hbar \dot{S}_p^x = 2J [S_p^y (S_{p-1}^z + S_{p+1}^z) - S_p^z (S_{p-1}^y + S_{p+1}^y)]; \quad (5.65)$$

$$\hbar \dot{S}_p^y = 2J [S_p^z (S_{p-1}^x + S_{p+1}^x) - S_p^x (S_{p-1}^z + S_{p+1}^z)]; \quad (5.66)$$

$$\hbar \dot{S}_p^z = 2J [S_p^x (S_{p-1}^y + S_{p+1}^y) - S_p^y (S_{p-1}^x + S_{p+1}^x)], \quad (5.67)$$

→ **nicht-lineare Gleichungen**

Vereinfachung:

betrachte kleine Amplitude der Anregung, d.h. $S_p^x, S_p^y \ll S$.

→ Vernachlässige Produktterme $S_p^y \cdot S_p^x$; in (5.67) und setze $S_p^z \approx S$

$$\Rightarrow \quad \hbar \dot{S}_p^x = +2JS(2S_p^y - S_{p-1}^y - S_{p+1}^y) \quad (5.68)$$

$$\hbar \dot{S}_p^y = -2JS(2S_p^x - S_{p-1}^x - S_{p+1}^x) \quad (5.69)$$

$$\hbar \dot{S}_p^z = 0 \quad \Rightarrow \quad S^z = \text{const} \quad (5.70)$$

→ **linearisierte Gleichungen**

Suche Lösungen von (5.69), (5.70) in Form laufender Wellen:

$$\begin{aligned} S_p^x &= u e^{i(pka - \omega t)} \\ S_p^y &= v e^{i(pka - \omega t)} \end{aligned} \quad (5.71)$$

Hierbei sind u, v Konstanten, p eine ganze Zahl und a die Gitterkonstante der Spinkette.

Einsetzen in (5.69), (5.70) ergibt

$$\begin{aligned} -i\hbar\omega u &= +2JS(2 - e^{-ika} - e^{ika})v = +4JS(1 - \cos ka)v \\ -i\hbar\omega v &= -2JS(2 - e^{-ika} - e^{ika})u = -4JS(1 - \cos ka)u \end{aligned} \quad (5.72)$$

Gleichungen haben nur eine Lösung für u und v wenn

$$\det \begin{vmatrix} i\hbar\omega & 4JS(1 - \cos ka) \\ -4JS(1 - \cos ka) & i\hbar\omega \end{vmatrix} = 0 \quad (5.73)$$

Dies liefert die gesuchte **Dispersionsrelation**

$$\hbar\omega(k) = 4JS(1 - \cos ka) \quad (5.74)$$

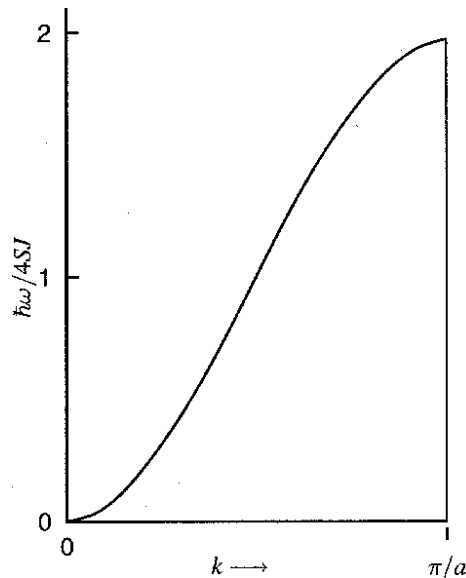
Eingesetzt in (5.72) liefert $v = -iu$.

Setzen wir diese Relation der Amplituden in (5.71) ein so folgt für die Realteile

$$\begin{aligned} \text{Re } S_p^x &= u \cos(pka - \omega t) \\ \text{Re } S_p^y &= u \sin(pka - \omega t) \end{aligned}$$

d.h. jeder Spin macht eine Präzession um die z -Achse.

Die Dispersionsrelation (5.74) für Spinwellen in einer Dimension unter Berücksichtigung der Austauschwechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn ist unten dargestellt



Maximalwert bei $k = \pi/a$:
 $\hbar\omega_{max} = 8JS$

Abb. 5.44: Dispersionsrelation für Magnonen in einem 1-dimensionalen Ferromagneten bei Nächste-Nachbarn-Wechselwirkung [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.10].

Das identische Resultat folgt aus der quantenmechanischen Rechnung.⁷

Man kann eine Spinwelle als Überlagerung von Zuständen mit jeweils nur einem umgeklappten Spin betrachten: $\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow$, $\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow$, $\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow$, $\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow$, $\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow$. Die Wahrscheinlichkeit einen bestimmten Spin im $S - 1$ -Zustand zu finden ist $\propto 1/N$.
 \rightarrow ein Magnon stellt eine Anregung mit Spin $1/2$ dar.

Für große Wellenlängen ist $ka \ll 1$, so dass $1 - \cos ka \approx \frac{1}{2}(ka)^2$ und damit

$$\hbar\omega(k) \approx 2JSa^2 \cdot k^2 \quad (5.75)$$

(Vgl. Phonon: $\omega \sim k$ für $ka \ll 1$).

• **Erweiterung auf 3 Dimensionen:**

Die Rechnung für ferromagnetisches kubisches Gitter mit Nächste-Nachbar-Wechselwirkung liefert

$$\hbar\omega(k) = 2JS \sum \left[z - \sum_{\vec{\delta}} \cos(\vec{k} \cdot \vec{\delta}) \right] \quad (5.76)$$

Die Summation läuft über alle z nächsten Nachbarn mit Ortsvektor $\vec{\delta}$ (bezogen auf Zentralatom).

Alle drei kubischen Gitterarten (mit Gitterkonstante a) liefern im Grenzfall $ka \ll 1$

$$\hbar\omega = (2JSa^2)k^2 \quad (5.77)$$

(experimentelle Bestimmung des Faktors $2JSa^2$ z.B. aus inelast. Neutronen-Streuung)

⁷siehe z.B. Ch. Kittel, *Quantum Theory of Solids*, Wiley (1987); Kap. 4.

• **Quantisierung der Spinwellen:**

Die Energie einer Mode der Frequenz ω_k mit n_k Magnonen ist

$$\epsilon_k = \left(n_k + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega_k \quad (5.78)$$

(Herleitung basiert auf quantenmechanischem harmonischem Oszillator – analog zu Photonen oder Phononen⁸)

Thermische Anregung von Magnonen:

Wir betrachten einen Kristall mit N Gitteratomen (jedes Atom mit Spin $\hbar S$).

Für $T \rightarrow 0$ befindet sich das System im (ferromagnetischen) Grundzustand, charakterisiert durch die Spinquantenzahl $N \cdot S$.

Die Anregung eines Magnons entspricht dem Umklappen eines Spins $1/2$.

D.h. der Gesamtspin des Systems wird bei Anregung eines Magnons um \hbar herabgesetzt (unabhängig von der Energie $\hbar \omega_k$ des Magnons).

Damit beträgt bei endlicher Temperatur mit n thermisch angeregten Magnonen die Spinquantenzahl des gesamten Systems $NS - n$.

Die T -Abhängigkeit der spontanen Magnetisierung erhält man somit aus der Bestimmung der Gesamtzahl der Magnonen, die bei einer vorgegebenen Temperatur angeregt sind:

$$\frac{M_s(0) - M_s(T)}{M_s(0)} = \frac{n}{NS} \quad (5.79)$$

Im thermischen Gleichgewicht ist die Besetzungswahrscheinlichkeit für Magnonen durch die Bose-Einstein-Verteilung $(\exp\{\hbar\omega/k_B T\} - 1)^{-1}$ gegeben.

Ist $D(\omega)d\omega$ die Zahl der Magnonenzustände im Frequenzintervall $(\omega, \omega + d\omega)$, dann beträgt die Gesamtzahl der Magnonen

$$n = \int \frac{D(\omega)}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1} d\omega \quad (5.80)$$

(Integration über sämtliche Werte von ω zu \vec{k} -Werten innerhalb der 1. Brillouin-Zone)

Wir diskutieren die **Situation bei sehr tiefen Temperaturen:**

→ Anregung nur von Magnonen mit kleinem k

⇒ es gilt der Grenzfall $\hbar\omega = 2JSa^2 \cdot k^2$ (5.77) der Dispersionsrelation.

D.h. die Kreisfrequenz ω und damit die Energie $\hbar\omega$ der Magnonen hängt nur vom Betrag des \vec{k} -Vektors ab.

→ Im \vec{k} -Raum sind Flächen konstanter Energie Kugeloberflächen.

Einer Kugelschale mit Radius k und Dicke dk im \vec{k} -Raum (Volumen $4\pi k^2 \cdot dk$) entspricht also ein Frequenzbereich $2\pi(\hbar/2JSa^2)^{3/2} \sqrt{\omega} d\omega$.

Multiplikation dieses Ausdrucks mit der Wellenzahldichte $V/8\pi^3$ (V: Kristallvolumen) im \vec{k} -Raum liefert die **Zahl der Magnonenzustände im Frequenzintervall $d\omega$:**

$$D(\omega)d\omega = \frac{V}{4\pi^2} \left(\frac{\hbar}{2JSa^2} \right)^{3/2} \sqrt{\omega} d\omega \quad (5.81)$$

⁸siehe z.B. Ch. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Anhang C.

Eingesetzt in (5.80) und Verschiebung der oberen Integrationsgrenze nach $\omega \rightarrow \infty$ (bei tiefen T geht der Integrand mit steigendem ω exponentiell $\rightarrow 0$) ergibt

$$n \approx \frac{V}{4\pi^2} \left(\frac{\hbar}{2JSa^2} \right)^{\frac{3}{2}} \int_0^\infty \frac{\omega^{1/2} d\omega}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) - 1} = \frac{V}{4\pi^2} \left(\frac{k_B T}{2JSa^2} \right)^{\frac{3}{2}} \underbrace{\int_0^\infty \frac{\sqrt{x}}{e^x - 1} dx}_{0.0587 \cdot 4\pi^2} \quad (5.82)$$

also

$$n = 0.0587 \frac{V}{a^3} \left(\frac{k_B T}{2JS} \right)^{3/2} \quad (5.83)$$

Diesen Ausdruck eingesetzt in (5.79) liefert

$$\frac{M_s(0) - M_s(T)}{M_s(0)} = 0.0587 \frac{V}{Na^3} \frac{1}{S} \left(\frac{k_B T}{2JS} \right)^{3/2} \quad (5.84)$$

V/a^3 ist gleich der Anzahl der Einheitszellen im Kristall

$\Rightarrow s = Na^3/V$ ist die Anzahl der Gitteratome je Einheitszelle

($s = 1$ beim einfach kubischen (sc) Gitter ; $s = 2$ (bcc); $s = 4$ (fcc)).

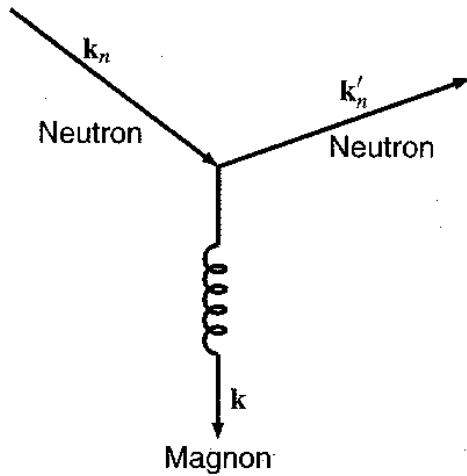
Also folgt schließlich die gesuchte T -Abhängigkeit der Magnetisierung zu

$$\frac{M_s(0) - M_s(T)}{M_s(0)} = \frac{0.0587}{sS} \left(\frac{k_B T}{2JS} \right)^{3/2} \quad \text{Blochsches } T^{3/2}\text{-Gesetz !} \quad (5.85)$$

(experimentall bestätigt !)

Inelastische Neutronenstreuung:

Neutron kann ein Magnon erzeugen oder vernichten



$$\frac{\hbar k_n^2}{2m_n} = \frac{\hbar k_n'^2}{2m_n} + \hbar\omega_k \quad \text{Energieerhaltung}$$

$$\vec{k}_n = \vec{k}'_n + \vec{k} + \vec{G} \quad \text{Impulserhaltung}$$

(G : reziproker Gittervektor)

Abb. 5.45: Erzeugung eines Magnons durch Streuung eines Neutrons an einer geordneten magnetischen Struktur [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.14].

ermöglicht die experimentelle Bestimmung der Magnon-Dispersionsrelation.

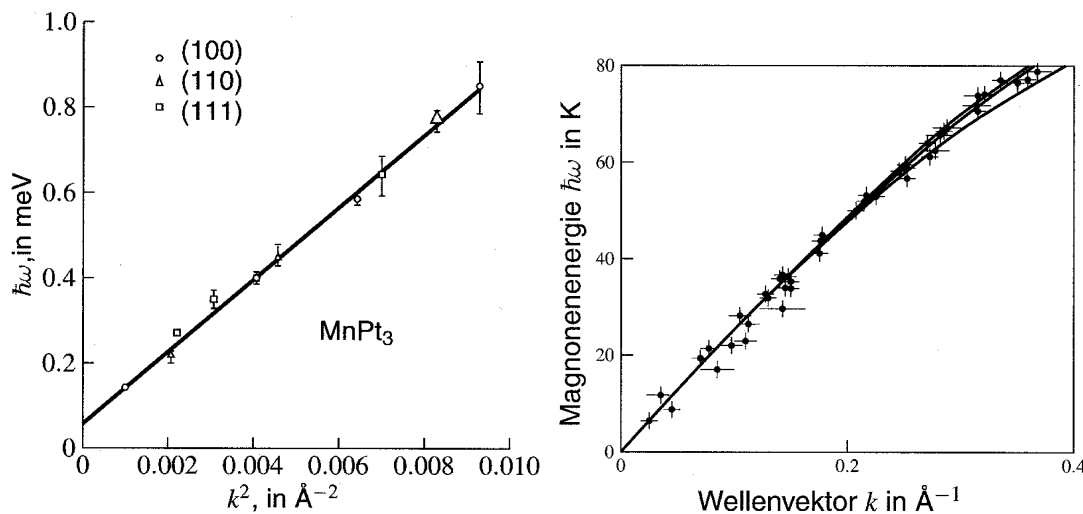


Abb. 5.46: **Links:** Magnonenenergie als Funktion des Quadrates des Wellenvektors, für den Ferromagneten MnPt_3 **Rechts:** Dispersionsrelation der Magnonen in dem einfach kubischen Antiferromagneten RbMnF_3 , bestimmt durch inelastische Neutronenstreuung bei 4.2 K [aus Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (1999); Abb.15.15, und Abb.15.26].

Antiferromagnetische Magnonen

analog zu ferromagnetischem Fall;

Setze Spins mit $\begin{matrix} \text{gerade} \\ \text{ungeraden} \end{matrix}$ Indizes $\begin{matrix} 2p \\ 2p+1 \end{matrix}$ \rightarrow Untergitter $\begin{matrix} \text{A} (S^z = S) \\ \text{B} (S^z = -S) \end{matrix}$

Nächste Nachbar-Wechselwirkung $J < 0$

\Rightarrow für "A":

$$\begin{aligned} \hbar \dot{S}_{2p}^x &= +2JS(-S_{2p}^y - S_{2p-1}^y - S_{2p+1}^y) \\ \hbar \dot{S}_{2p}^y &= -2JS(-2S_{2p}^x - S_{2p-1}^x - S_{2p+1}^x) \end{aligned}$$

\Rightarrow für "B":

$$\begin{aligned} \hbar \dot{S}_{2p+1}^x &= +2JS(-2S_{2p+1}^y - S_{2p}^y - S_{2p+2}^y) \\ \hbar \dot{S}_{2p+1}^y &= -2JS(-2S_{2p+1}^x - S_{2p}^x - S_{2p+2}^x) \end{aligned}$$

Setze: $S^+ = S^x + iS^y$

$$\begin{aligned} \hbar \dot{S}_{2p}^+ &= +2iJS(2S_{2p}^+ - S_{2p-1}^+ - S_{2p+1}^+) \\ \hbar \dot{S}_{2p+1}^+ &= -2iJS(2S_{2p+1}^+ + S_{2p}^+ + S_{2p+2}^+) \end{aligned}$$

Ansatz:

$$\begin{aligned} S_{2p}^+ &= ue^{i(2pka - \omega t)} \\ S_{2p+1}^+ &= ve^{i((2p+1)ka - \omega t)} \end{aligned}$$

$\Rightarrow \omega_{\text{ex}} = -4JS/\hbar = 4|J|S/\hbar :$

$$\begin{aligned} \omega u &= \frac{1}{2}\omega_{\text{ex}}(2u + ve^{-ika} + ve^{ika}) \\ -\omega v &= \frac{1}{2}\omega_{\text{ex}}(2v + ue^{-ika} + ue^{ika}) \end{aligned}$$

Lösbar für

$$\begin{vmatrix} \omega_{\text{ex}} - \omega & \omega_{\text{ex}} \cos ka \\ \omega_{\text{ex}} \cos ka & \omega_{\text{ex}} + \omega \end{vmatrix} = 0$$

so dass

$$\begin{aligned} \omega^2 &= \omega_{\text{ex}}^2(1 - \cos^2 ka); \quad \text{i.e.} \\ \omega &= \omega_{\text{ex}}|\sin ka| \end{aligned}$$

Magnonen haben **unterschiedliche Dispersionsrelationen** im ferro- und antiferromagnetischen Zustand (s. Abb.5.46):

Für kleine k : $\omega_{\text{FM}} \propto k^2$, während $\omega_{\text{AFM}} \propto k!$

