

格林函数对 $S \geq \frac{1}{2}$ 情形下反铁磁性 理論的应用*

鄭庆祺 蒲富恪

提 要

利用双時間格林函数討論了 $S \geq \frac{1}{2}$ 情形的各向同性反铁磁性理論, 对立方晶体得到了基态能量, 次点陣自发磁矩及平行磁化率的表达式. 所得結果在低温时与自旋波理論作了比較, 在高温时与已有的結果比較接近. 理論給出了 $S \geq \frac{1}{2}$ 时在整个温度范围内近似适用的統一結果.

以 Heisenberg 模型为基础的反铁磁性理論已有了許多工作, 但这些理論都局限于在一定的温度范围内适用. 适用于低温的反铁磁性理論是铁磁性自旋波理論的直接推广, 正如同铁磁性的情形一样, 简单的自旋波理論^[1]也沒有考虑自旋波間的相互作用. 对于铁磁性情形, 这一相互作用的影响, 在 Dyson 的工作^[2]中得到了出色的討論. Oguchi^[3] 的工作表明, 利用数学形式上简单得多的 Holstein-Primakoff 变换的高級近似来考虑自旋波的相互作用, 可以在相当好的程度上与 Dyson 的結果相符. Oguchi 将同样方法推广到討論反铁磁性的自旋波理論, 其結果應該比简单的自旋波理論更好, 但所有自旋波理論都只适用于低温范围. 另一方面, 适用于 Neel 点附近高温区域的理論有用 Bethe-Peierls 方法的工作^[4,5].

Боголюбов-Тябликов^[6] 利用双時間格林函数討論了铁磁性的量子理論. 在一定近似下所得到的磁化強度的表达式在低温范围基本上与 Dyson 理論符合, 在居里点附近又与分子場理論相近, 因而这一理論給出了在整个温度范围内都比較适用的統一結果. 用这一方法也討論了铁磁共振及弛豫理論^[7]. 所得結果也表明了这一点. 同样的方法也曾推广到反铁磁性的量子理論^[8]. 但在文献[6,8]中都用了 Pauli 算符, 因而只适用于 $S = \frac{1}{2}$ 的場合. 有一些工作企图将双時間格林函数方法推广到 $S > \frac{1}{2}$ 的情形, 其中 R. A. Tahir-Kheli, D. ter Haar 所采用的方法^[9]較為合理. 他們所用的近似是文献[6,8]中所用的近似的自然推广 ($S = \frac{1}{2}$ 时則相同). 这样得到的铁磁性理論同样适用于整个温度范围. 这一方法也可以推广到 $S \geq \frac{1}{2}$ 的反铁磁性的情形. 本文采用文献[9]中所用的近似, 討

* 1963年5月3日收到.

論了各向同性的反铁磁体的基态,基态能量,次点陣自发磁矩,轉变点温度等. 所得到的結果在低温时与自旋波理論作了比較,在高温时与 Bethe-Peierls 方法的結果及分子場理論作了比較. 正如所預期的,所得到的理論在整个温度范围内都比較适用.

二

我們考虑由 N 个离子构成立方晶体结构的反铁磁体. 每个离子具有自旋量子数 S , 整个晶体可以分成两个次点陣, 分別以 $\mathbf{f}_1$ 和 $\mathbf{f}_2$ 表示两个次点陣中的格点的位置. 为簡單起见, 考虑各向同性的晶体, 并只考虑最近邻間的反铁磁性交換作用. 这样哈密頓量为

$$\mathcal{H} = 2J \sum_{\langle \mathbf{f}_1, \mathbf{f}_2 \rangle} \mathbf{S}_{\mathbf{f}_1} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{f}_2} + \mu_B g \sum_{\mathbf{f}_1} \mathbf{S}_{\mathbf{f}_1} \cdot \mathbf{H} + \mu_B g \sum_{\mathbf{f}_2} \mathbf{S}_{\mathbf{f}_2} \cdot \mathbf{H}, \quad (1)$$

其中 J 为交換积分的绝对值 ($J > 0$), $\langle \mathbf{f}_1, \mathbf{f}_2 \rangle$ 表示只考虑近邻的对, 其他符号皆为通常的意义. 在討論次点陣的自发磁化时, 可以令外場 $H = 0$. 令 z 軸为量子化軸, 对 $\mathbf{f}_2$ 点陣的自旋算符 $\mathbf{S}_{\mathbf{f}_2}$ 作如下变换:

$$S_{\mathbf{f}_2}^z \rightarrow -S_{\mathbf{f}_2}^z, \quad S_{\mathbf{f}_2}^+ \rightarrow S_{\mathbf{f}_2}^-, \quad S_{\mathbf{f}_2}^- \rightarrow S_{\mathbf{f}_2}^+.$$

并为书写簡單起见, 将 $S_{\mathbf{f}_2}^z, S_{\mathbf{f}_2}^+, S_{\mathbf{f}_2}^-$ 仍写作 $S_{\mathbf{f}_2}^z, S_{\mathbf{f}_2}^+, S_{\mathbf{f}_2}^-$. 经过变换后(1)式变成 ($H = 0$)

$$\mathcal{H} = -2J \sum_{\langle \mathbf{f}_1, \mathbf{f}_2 \rangle} S_{\mathbf{f}_1}^z S_{\mathbf{f}_2}^z + J \sum_{\langle \mathbf{f}_1, \mathbf{f}_2 \rangle} (S_{\mathbf{f}_1}^+ S_{\mathbf{f}_2}^+ + S_{\mathbf{f}_1}^- S_{\mathbf{f}_2}^-). \quad (2)$$

这样 $S_{\mathbf{f}_1}^{\pm}, S_{\mathbf{f}_2}^{\pm}$ 的运动方程为¹⁾

$$\left. \begin{aligned} i \frac{dS_{\mathbf{f}_1}^{\pm}}{dt} &= \pm 2J \sum_{\mathbf{f}_2} (S_{\mathbf{f}_1}^{\pm} S_{\mathbf{f}_2}^z + S_{\mathbf{f}_1}^z S_{\mathbf{f}_2}^{\mp}), \\ i \frac{dS_{\mathbf{f}_2}^{\pm}}{dt} &= \pm 2J \sum_{\mathbf{f}_1} (S_{\mathbf{f}_1}^z S_{\mathbf{f}_2}^{\pm} + S_{\mathbf{f}_1}^{\mp} S_{\mathbf{f}_2}^z). \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

作格林函数

$$\left. \begin{aligned} G_{\mathbf{f}_1 \mathbf{f}_1'}^{(1)}(t-t') &= \langle \langle S_{\mathbf{f}_1}^+(t) | (S_{\mathbf{f}_1'}^-(t'))^n (S_{\mathbf{f}_1}^+(t'))^{n-1} \rangle \rangle = \\ &= \theta(t-t') \langle [S_{\mathbf{f}_1}^+(t), (S_{\mathbf{f}_1'}^-(t'))^n (S_{\mathbf{f}_1}^+(t'))^{n-1}] \rangle, \\ G_{\mathbf{f}_2 \mathbf{f}_1'}^{(2)}(t-t') &= \langle \langle S_{\mathbf{f}_2}^-(t) | (S_{\mathbf{f}_1'}^-(t'))^n (S_{\mathbf{f}_1}^+(t'))^{n-1} \rangle \rangle, \\ \Gamma_{\mathbf{f}_2 \mathbf{f}_2'}^{(1)}(t-t') &= \langle \langle S_{\mathbf{f}_2}^+(t) | (S_{\mathbf{f}_2'}^-(t'))^n (S_{\mathbf{f}_2}^+(t'))^{n-1} \rangle \rangle, \\ \Gamma_{\mathbf{f}_1 \mathbf{f}_2'}^{(2)}(t-t') &= \langle \langle S_{\mathbf{f}_1}^-(t) | (S_{\mathbf{f}_2'}^-(t'))^n (S_{\mathbf{f}_2}^+(t'))^{n-1} \rangle \rangle. \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

利用(3)式得到格林函数的运动方程式为

$$\left. \begin{aligned} i \frac{dG_{\mathbf{f}_1 \mathbf{f}_1'}^{(1)}}{dt} &= i\delta(t-t') f_n(S_1) \delta_{\mathbf{f}_1 \mathbf{f}_1'} + 2J \sum_{\mathbf{f}_2} \langle \langle (S_{\mathbf{f}_1}^+ S_{\mathbf{f}_2}^z + S_{\mathbf{f}_1}^z S_{\mathbf{f}_2}^-) | (S_{\mathbf{f}_1'}^-(t'))^n (S_{\mathbf{f}_1}^+(t'))^{n-1} \rangle \rangle \rangle, \\ i \frac{dG_{\mathbf{f}_2 \mathbf{f}_1'}^{(2)}}{dt} &= -2J \sum_{\mathbf{f}_1} \langle \langle (S_{\mathbf{f}_1}^z S_{\mathbf{f}_2}^+ + S_{\mathbf{f}_1}^+ S_{\mathbf{f}_2}^z) | (S_{\mathbf{f}_1'}^-(t'))^n (S_{\mathbf{f}_1}^+(t'))^{n-1} \rangle \rangle \rangle. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

对于 $\Gamma_{\mathbf{f}_2 \mathbf{f}_2'}^{(1)}, \Gamma_{\mathbf{f}_1 \mathbf{f}_2'}^{(2)}$ 亦有相应的方程式 ($\mathbf{f}_1$ 和 $\mathbf{f}_2$ 互换), 其中函数 $f_n(S_i)$ ($i = 1, 2$) 为

1) 我們用 $\hbar = 1$ 作为单位.

$$\begin{aligned}
f_n(S_i) &= \langle [S_{f_i}^+, (S_{f_i}^-)^n (S_{f_i}^+)^{n-1}] \rangle = \\
&= \left\langle (2nS_{f_i}^z + (n^2 - n)) \prod_{p=1}^{n-1} (S(S+1) - (n-p-1)(n-p) - \right. \\
&\quad \left. - (2n-2p-1)S_{f_i}^z - (S_{f_i}^z)^2) \right\rangle, \quad (6)
\end{aligned}$$

作近似

$$\begin{aligned}
\langle \langle S_{f_1}^+ S_{f_2}^z | (S_{f_1}^-)^n (S_{f_1}^+)^{n-1} \rangle \rangle &\rightarrow \langle S_{f_2}^z \rangle \langle \langle S_{f_1}^+ | (S_{f_1}^-)^n (S_{f_1}^+)^{n-1} \rangle \rangle, \\
\langle \langle S_{f_1}^z S_{f_2}^- | (S_{f_1}^-)^n (S_{f_1}^+)^{n-1} \rangle \rangle &\rightarrow \langle S_{f_1}^z \rangle \langle \langle S_{f_2}^- | (S_{f_1}^-)^n (S_{f_1}^+)^{n-1} \rangle \rangle, \\
\langle S_{f_2}^z \rangle &= \langle S_{f_1}^z \rangle = S\sigma;
\end{aligned}$$

再作变换

$$G_{f_1 f_1}(t) = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\mathbf{k} \cdot (f_1 - f_1)} e^{-iEt} G_{\mathbf{k}}(E) dE,$$

代入(5)式可以求得

$$\begin{aligned}
G_{\mathbf{k}}^{(1)}(E) &= \frac{if_n(S)}{2\pi} \frac{1}{2E_{\mathbf{k}}(S)} \left\{ \frac{E_{\mathbf{k}}(S) + 2zJS\sigma}{E - E_{\mathbf{k}}(S)} + \frac{E_{\mathbf{k}}(S) - 2zJS\sigma}{E + E_{\mathbf{k}}(S)} \right\}, \\
G_{\mathbf{k}}^{(2)}(E) &= -\frac{if_n(S)}{2\pi} \frac{2zJ\gamma_{\mathbf{k}}S\sigma}{2E_{\mathbf{k}}(S)} \left\{ \frac{1}{E - E_{\mathbf{k}}(S)} - \frac{1}{E + E_{\mathbf{k}}(S)} \right\}, \quad (7)
\end{aligned}$$

其中

$$\begin{aligned}
\gamma_{\mathbf{k}} &= \frac{1}{z} \sum_{\rho} e^{i\mathbf{k} \cdot \rho}, \\
E_{\mathbf{k}}(S) &= 2zJS\sigma(1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2)^{1/2}. \quad (8)
\end{aligned}$$

ρ 对最近邻求和而 $f_n(S_i)$ 与指标 i 无关, 故简单地写成 $f_n(S)$. 对 Γ 亦有相同的解 (f_1 和 f_2 互换, 在目前简单情形中两者相同), 于是有¹⁾

$$\langle (S_{f_1}^-)^n (S_{f_1}^+)^n \rangle = \frac{f_n(S)}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{2zJS\sigma}{E_{\mathbf{k}}} \coth \frac{E_{\mathbf{k}}}{2\Theta} - 1 \right\} = \phi(S) f_n(S), \quad (9)$$

$$\langle (S_{f_1}^-)^n (S_{f_1}^+)^{n-1} S_{f_2}^- \rangle = -\frac{2f_n(S)zJS\sigma}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\gamma_{\mathbf{k}} e^{i(f_2 - f_1) \cdot \mathbf{k}}}{E_{\mathbf{k}}} \coth \frac{E_{\mathbf{k}}}{2\Theta}, \quad (10)$$

$$\phi(S) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{2zJS\sigma}{E_{\mathbf{k}}} \coth \frac{E_{\mathbf{k}}}{2\Theta} - 1 \right\}, \quad (11)$$

其中 $\Theta = k_b T$, k_b 为 Boltzmann 常数, T 为绝对温度. 利用关系式²⁾

$$\begin{aligned}
(S_{f_1}^-)^n (S_{f_1}^+)^n &= \prod_{p=1}^n \{ S(S+1) - (n-p)(n-p+1) - \\
&\quad - (2n-2p+1)S_{f_1}^z - (S_{f_1}^z)^2 \}, \\
\prod_{r=-s}^s (S_{f_1}^z - r) &= 0 \quad (12)
\end{aligned}$$

1) 格林函数与平均值间的关系参阅文献[6](或[8,9]).

2) 参阅文献[9], 这里所用的方法与文献[9]同.

及(6)式,在 $n = 1, 2, \dots, 2s$ 时,由(9)式分别得到 $\langle S_{f_1}^z \rangle, \langle (S_{f_1}^z)^2 \rangle, \dots, \langle (S_{f_1}^z)^{2s} \rangle$ 的 $2s$ 个联立方程式. 由它们可以解出次点阵的自发磁矩:

$$\left. \begin{aligned} \langle S_{f_1}^z \rangle = S\sigma &= \frac{\frac{1}{2}}{1 + 2\phi\left(\frac{1}{2}\right)} & S = \frac{1}{2}, \\ &= \frac{1 + 2\phi(1)}{1 + 3\phi(1) + 3\phi^2(1)} & S = 1, \\ &= \frac{\frac{3}{2} + 5\phi\left(\frac{3}{2}\right) + 5\phi^2\left(\frac{3}{2}\right)}{\left(1 + \phi\left(\frac{3}{2}\right)\right)^4 - \left(\phi\left(\frac{3}{2}\right)\right)^4} & S = \frac{3}{2}, \\ &= \frac{2 + 9\phi(2) + 15\phi^2(2) + 10\phi^3(2)}{(1 + \phi(2))^5 - (\phi(2))^5} & S = 2. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

由格林函数 Γ 求出的 f_2 次点阵的自发磁矩完全一样.

$$\langle S_{f_1}^z \rangle = \langle S_{f_2}^z \rangle = S\sigma$$

系统的平均能量

$$\langle \mathcal{H} \rangle = -2J \sum_{f_1 f_2} \langle S_{f_1}^z S_{f_2}^z \rangle + J \sum_{f_1 f_2} \{ \langle S_{f_1}^+ S_{f_2}^+ \rangle + \langle S_{f_1}^- S_{f_2}^- \rangle \}. \quad (14)$$

由(10)令 $n = 1$, 得

$$\langle S_{f_1}^- S_{f_2}^- \rangle = -\frac{4zJ(S\sigma)^2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\gamma_{\mathbf{k}} e^{i(\mathbf{f}_2 - \mathbf{f}_1) \cdot \mathbf{k}}}{E_{\mathbf{k}}} \coth \frac{E_{\mathbf{k}}}{2\Theta}. \quad (15)$$

易见,

$$\langle S_{f_1}^+ S_{f_2}^+ \rangle = -\frac{4zJ(S\sigma)^2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\gamma_{\mathbf{k}} e^{-i(\mathbf{f}_2 - \mathbf{f}_1) \cdot \mathbf{k}}}{E_{\mathbf{k}}} \coth \frac{E_{\mathbf{k}}}{2\Theta} \quad (16)$$

近似地认为

$$-2J \sum_{f_1 f_2} \langle S_{f_1}^z S_{f_2}^z \rangle = -NzJ(S\sigma)^2. \quad (17)$$

于是平均能量

$$\bar{E} = \langle \mathcal{H} \rangle = -NzJ(S\sigma)^2 \left(1 + 2zJ \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\gamma_{\mathbf{k}}^2}{E_{\mathbf{k}}} \coth \frac{E_{\mathbf{k}}}{2\Theta} \right). \quad (18)$$

三

首先考虑基态 ($T = 0$) 的能量和次点阵的饱和磁矩 (对每个离子而言), 为此令 $\Theta = 0$, (11)式就成为

$$\phi_0(S) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{2zJS\sigma}{E_{\mathbf{k}}} - 1 \right\} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{1}{\sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}} - 1 \right\} = \frac{c'}{2}, \quad (19)$$

其中 k 对倒格空间的第一个 Brillouin 区内的所有 k 求和, 它是一个与晶体结构有关的常数. 代入(13)式, 得

$$\left. \begin{aligned}
 S\sigma_0 &= \frac{\frac{1}{2}}{1+c'}, & S &= \frac{1}{2}, \\
 &= \frac{1+c'}{1+\frac{3}{2}c'+\frac{3}{4}c'^2}, & S &= 1, \\
 &= \frac{\frac{3}{2}+\frac{5}{2}c'+\frac{5}{4}c'^2}{\left(1+\frac{c'}{2}\right)^4-\left(\frac{c'}{2}\right)^4}, & S &= \frac{3}{2}, \\
 &= \frac{2+\frac{9}{2}c'+\frac{15}{4}c'^2+\frac{10}{8}c'^3}{\left(1+\frac{c'}{2}\right)^5-\left(\frac{c'}{2}\right)^5}, & S &= 2.
 \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

而基态能量 E_0 由(18)式得到为

$$E_0 = -NzJ(S\sigma_0)^2 \left\{ 1 + \frac{1}{S\sigma_0}(c+c') \right\}, \quad (21)$$

其中

$$c = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \{1 - (1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2)^{1/2}\} \quad (22)$$

也是一个与晶体结构有关的常数。按 Kubo, Anderson^[1] 的计算, 对 NaCl 型结构($z=6$), $c'=0.156$, $c=0.097$ 。而对 CsCl 型结构($z=8$), $c'=0.1186$ ¹⁾, $c=0.073$ 。代入(20)和(21)式就可以得到这两种晶体结构的 $S \geq \frac{1}{2}$ 时反铁磁性基态的能量 E_0 及次点阵的饱和自发磁矩。它们的数值分别列于表 1, 表 2 中。作为比较, 在这些表中也列入了已有工作的结果。

表 1 次点阵自发磁矩 ($T=0^\circ\text{K}$)

S	$S\sigma_0(z=6)$		$S\sigma_0(z=8)$	
	Oguchi	本 文	Oguchi	本 文
1/2	0.422	0.433	0.4407	0.4472
1	0.922	0.924	0.9407	0.9447
3/2	1.422	1.422	1.4407	1.4407
2	1.922	1.922	1.9407	1.9407

Anderson^[1] 是简单的自旋波理论, Kubo^[1] 的理论和简单自旋波理论亦相当。Oguchi^[3] 是考虑了自旋波之间的相互作用, 这一作用使基态的能量更低。Boon^[11] 用了微扰论的图形的技术, 得到了反铁磁性基态的能量, 这是一种新的方法, 表中也列入了他的结果作为比较。在 $S = \frac{1}{2}$ 时, 我们所得到的结果和文献[8]的相同。实际上所用的近似在这

1) H. L. Davis^[10] 最近指出 Kubo 原先计算的 c' 的数值, 对 $z=8$ ($c'=0.15$) 是错误的。他得到的数值是 $c'=0.118636$, 本文用了 Davis 的数值。

表 2 反铁磁体基态能量

S	$ E_0 /zJN \quad (z=6)$				$ E_0 /zJN \quad (z=8)$			
	Anderson	Oguchi	Boon	本 文	Kubo	Oguchi	Boon	本 文
1/2	0.2985	0.3008	0.3086	0.2965	0.2865	0.2878	0.2879	0.2857
1	1.097	1.099	1.0915	1.087	1.073	1.0743	1.0671	1.0734
3/2	2.395	2.399	—	2.382	2.3595	2.3608	—	2.3510
2	4.194	4.196	—	4.180	4.146	4.1473	—	4.138

时也完全一样。因而这里所作的近似是文献[8]中的直接推广。由表 1, 2 可以看到, S 愈大, 则我们的结果和自旋波近似愈接近。对次点阵自发磁矩, 在 S 较大时是和自旋波理论相同, 但对于基态能量则符合较差。可能这是我们所作的近似没有充分地考虑到低温下诸自旋间的关联之故。虽然如此, 所得的结果并未超出 Anderson 确立的基态能量范围^[14]。

在低温下 $\Theta \simeq 0$, 由(11)式得到

$$\begin{aligned} \phi(S) &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left\{ \frac{1}{(1-\gamma_{\mathbf{k}}^2)^{1/2}} \coth \frac{2zJS\sigma(1-\gamma_{\mathbf{k}}^2)^{1/2}}{2\Theta} - 1 \right\} = \\ &= \frac{c'}{2} + \frac{2}{N} \sum_l \sum_{\mathbf{k}} \left(\frac{1}{\sqrt{1-\gamma_{\mathbf{k}}^2}} \right) \left(e^{\frac{-2lzJS\sigma(1-\gamma_{\mathbf{k}}^2)^{1/2}}{\Theta}} \right). \end{aligned} \quad (23)$$

按通常的方法, 对 NaCl 及 CsCl 类型的点阵求得的结果为

$$\phi(S) = \frac{c'}{2} + a_1 \left(\frac{\Theta}{S\sigma} \right)^2 + a_2 \left(\frac{\Theta}{S\sigma} \right)^4 + a_3 \left(\frac{\Theta}{S\sigma} \right)^6 + \dots, \quad (24)$$

其中对 NaCl 型晶体结构 ($z=6$), 系数为

$$\left. \begin{aligned} a_1 &= 3\sqrt{3} \frac{\zeta(2)}{\pi^2} \left(\frac{1}{2zJ} \right)^2, \\ a_2 &= 18\sqrt{3} \frac{\zeta(4)}{\pi^2} \left(\frac{1}{2zJ} \right)^4, \\ a_3 &= 351\sqrt{3} \frac{\zeta(6)}{\pi^2} \left(\frac{1}{2zJ} \right)^6. \end{aligned} \right\} \quad (25)$$

对 CsCl 型晶体结构 ($z=8$) 为

$$\left. \begin{aligned} a_1 &= 4 \frac{\zeta(2)}{\pi^2} \left(\frac{1}{2zJ} \right)^2, \\ a_2 &= 24 \frac{\zeta(4)}{\pi^2} \left(\frac{1}{2zJ} \right)^4, \\ a_3 &= 438 \frac{\zeta(6)}{\pi^2} \left(\frac{1}{2zJ} \right)^6, \end{aligned} \right\} \quad (25')$$

因此在低温下 $\phi(S) - \frac{c'}{2}$ 是一个小量。将(24), (25) 式代入(13)式, 并利用对小量的展开, 可以得到次点阵的磁化强度与温度的关系。

$$\langle S^z \rangle = S\sigma = S\sigma_0 - A_1 \frac{\zeta(2)}{\pi^2} \left(\frac{\Theta}{2zJS} \right)^2 - \left(A_2 \left(\frac{\zeta(2)}{\pi^2} \right)^2 + A_3 \frac{\zeta(4)}{\pi^2} \right) \left(\frac{\Theta}{2zJS} \right)^4 - \left\{ A_4 \left(\frac{\zeta(2)}{\pi^2} \right)^3 + A_5 \frac{\zeta(2)\zeta(4)}{\pi^4} + A_6 \frac{\zeta(6)}{\pi^2} \right\} \left(\frac{\Theta}{2zJS} \right)^6 + \dots, \quad (26)$$

其中系数 $A_1, A_2, \dots$ 等与晶体结构及 S 的数值有关, 与自旋波理论不同, 它们不能写成 S 的统一的函数. 对于 NaCl 型结构, 这些系数的数值如表 3 所示.

表 3 系数 $A_1, A_2, \dots, A_6$ 的数值 ($z=6$)

S	A_1	A_2	A_3	A_4	A_5	A_6
1/2	$3\sqrt{3}$	1.156×54	$1.336 \times 18\sqrt{3}$	$1.336 \times 648\sqrt{3}$	6.179×324	$1.786 \times 351\sqrt{3}$
1	$1.12 \times 3\sqrt{3}$	1.051×54	$1.303 \times 18\sqrt{3}$	$0.678 \times 648\sqrt{3}$	4.020×324	$1.515 \times 351\sqrt{3}$
3/2	$1.116 \times 3\sqrt{3}$	0.809×54	$1.230 \times 18\sqrt{3}$	$0.433 \times 648\sqrt{3}$	2.720×324	$1.259 \times 351\sqrt{3}$
2	$1.084 \times 3\sqrt{3}$	0.599×54	$1.168 \times 18\sqrt{3}$	$0.190 \times 648\sqrt{3}$	1.958×324	$1.267 \times 351\sqrt{3}$

如果将(26)式改写成

$$S\sigma = S\sigma_0 - c_1 3\sqrt{3} \frac{\zeta(2)}{\pi^2} \left(\frac{\Theta}{2zJS} \right)^2 - c_2 18\sqrt{3} \frac{\zeta(4)}{\pi^2} \left(\frac{\Theta}{2zJS} \right)^4 + \dots,$$

则第一项的数值已列于表 1 中, 第二、三项的系数与 Oguchi 的结果的比较如表 4 所示.

表 4 与 Oguchi 的结果的比较 ($z=6$)

S	c_1		c_2	
	Oguchi	本 文	Oguchi	本 文
1/2	0.806	1	0.612	1.843
1	0.903	1.120	0.806	1.764
3/2	0.938	1.116	0.873	1.585
2	0.952	1.084	0.903	1.431

由表 4 可以看到, S 愈大, 则与自旋波理论愈接近. 含温度幂次大的项差异较大.

在 Neel 温度附近, 自发磁矩接近于消失, $\sigma \ll 1$, (11) 式按小量 $S\sigma$ 展开:

$$\phi(S) = \frac{c''\Theta}{2zJS\sigma} + \frac{1}{2} \left(\frac{2zJS\sigma}{2\Theta} - 1 \right) + \dots, \quad (27)$$

其中 c'' 为与晶体结构有关的常数:

$$c'' = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}. \quad (28)$$

对 NaCl 型结构, $c'' = 1.516$, 对 CsCl 型结构, $c'' = 1.393$, 代入(13)式得到在 Neel 温度附近, 次点阵的自发磁矩为

$$\langle S^z \rangle = S\sigma = SA \frac{\Theta}{\Theta_N} \sqrt{\frac{\Theta_N - \Theta}{\Theta_N}}, \quad (29)$$

其中 Θ_N 为 Neel 温度

$$\Theta_N = \frac{2JzS(S+1)}{3c''}. \quad (30)$$

系数 A 与 S 有关:

$$\left. \begin{aligned} A &= \sqrt{\frac{3}{c''}} & S &= \frac{1}{2}, \\ &= \frac{4}{\sqrt{3}} \frac{1}{\sqrt{1+c''}} & S &= 1, \\ &= \frac{5\sqrt{5}}{\sqrt{3}\sqrt{12+5c''}} & S &= \frac{3}{2}, \\ &= 2\sqrt{\frac{15}{21+5c''}} & S &= 2. \end{aligned} \right\} \quad (31)$$

(29) 式的形式与分子场理论相同, 但 Θ_N 的值与分子场不同, 而有

$$\frac{\Theta_{N(\text{本文})}}{\Theta_{N(\text{分子场})}} = \frac{1}{c''}$$

李蔭远^[4]及稍后 Brown-Lattinger^[5] 用 Bethe-Peierls 方法作了比分子场理论更严格的理论, 在表 5 中我们将求得的 $\frac{\Theta_N}{J}$ 的数值和文献 [5] 的结果作了比较, 可以看到, 在 S 较小时是相当接近的.

表 5 $\frac{\Theta_N}{J}$ 的数值

S	$z=6$		$z=8$	
	本 文	B-L	本 文	B-L
1/2	1.98	2.01	2.87	3.16
1	5.12	6.19	7.65	9.03
3/2	9.60	11.91	14.35	17.04
2	15.35	19.23	22.96	27.41

四

为了求平行磁化率 χ_{11} , 可以在 (1) 中设 H 在 z 方向. 利用与第二节中所用的同样的方法, 可以求得格林函数 $G_{\mathbf{k}}^{(1)}(E)$, $\Gamma_{\mathbf{k}}^{(1)}(E)$ 为

$$\left. \begin{aligned} G_{\mathbf{k}}^{(1)}(E) &= \frac{i}{2\pi} f_n(S_1) \frac{1}{E_1(\mathbf{k}) - E_2(\mathbf{k})} \left\{ \frac{E_1(\mathbf{k}) + 2zJS\sigma_1 + g\mu_b H}{E - E_1(\mathbf{k})} - \right. \\ &\quad \left. - \frac{E_2(\mathbf{k}) + 2zJS\sigma_1 + g\mu_b H}{E - E_2(\mathbf{k})} \right\}, \\ \Gamma_{\mathbf{k}}^{(1)}(E) &= \frac{i}{2\pi} f_n(S_2) \frac{1}{E'_1(\mathbf{k}) - E'_2(\mathbf{k})} \left\{ \frac{E'_1(\mathbf{k}) + 2zJS\sigma_2 - g\mu_b H}{E - E'_1(\mathbf{k})} - \right. \\ &\quad \left. - \frac{E'_2(\mathbf{k}) + 2zJS\sigma_2 - g\mu_b H}{E - E'_2(\mathbf{k})} \right\}. \end{aligned} \right\} \quad (32)$$

由于现在 $\langle S_{i_1}^z \rangle$ 和 $\langle S_{i_2}^z \rangle$ 不再相等, $f_n(S_1)$, $f_n(S_2)$ 亦不相同. 其中 $E(\mathbf{k})$ 为

$$\left. \begin{aligned} E_1(\mathbf{k}) &= JzS(\sigma_2 - \sigma_1 + \sqrt{(\sigma_2 + \sigma_1)^2 - 4\gamma_{\mathbf{k}}^2\sigma_1\sigma_2}) - g\mu_b H, \\ E_2(\mathbf{k}) &= JzS(\sigma_2 - \sigma_1 - \sqrt{(\sigma_2 + \sigma_1)^2 - 4\gamma_{\mathbf{k}}^2\sigma_1\sigma_2}) - g\mu_b H, \\ E'_1(\mathbf{k}) &= JzS(\sigma_1 - \sigma_2 + \sqrt{(\sigma_2 + \sigma_1)^2 - 4\gamma_{\mathbf{k}}^2\sigma_1\sigma_2}) + g\mu_b H, \\ E'_2(\mathbf{k}) &= JzS(\sigma_1 - \sigma_2 - \sqrt{(\sigma_2 + \sigma_1)^2 - 4\gamma_{\mathbf{k}}^2\sigma_1\sigma_2}) + g\mu_b H. \end{aligned} \right\} \quad (33)$$

由此很容易得到

$$\left. \begin{aligned} \langle (S_{f_1}^-)^n (S_{f_1}^+)^n \rangle &= f_n(S_1) \phi_1(S), \\ \langle (S_{f_2}^-)^n (S_{f_2}^+)^n \rangle &= f_n(S_2) \phi_2(S). \end{aligned} \right\} \quad (34)$$

$$\left. \begin{aligned} \phi_1(S) &= \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{E_1(\mathbf{k}) - E_2(\mathbf{k})} \left\{ \frac{E_1(\mathbf{k}) + 2zJS\sigma_1 + g\mu_b H}{e^{E_1(\mathbf{k})/\Theta} - 1} - \frac{E_2(\mathbf{k}) + 2zJS\sigma_1 + g\mu_b H}{e^{E_2(\mathbf{k})/\Theta} - 1} \right\}, \\ \phi_2(S) &= \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{E'_1(\mathbf{k}) - E'_2(\mathbf{k})} \left\{ \frac{E'_1(\mathbf{k}) + 2zJS\sigma_2 - g\mu_b H}{e^{E'_1(\mathbf{k})/\Theta} - 1} - \frac{E'_2(\mathbf{k}) + 2zJS\sigma_2 - g\mu_b H}{e^{E'_2(\mathbf{k})/\Theta} - 1} \right\}. \end{aligned} \right\} \quad (35)$$

利用(12)式就可以求出 $S\sigma_1$ 和 $S\sigma_2$ 的表达式, 它们在形式上和(13)式完全相同. 只要分别用 σ_i 和 $\phi_i(S)$ ($i = 1, 2$) 代替(13)式的 σ 和 ϕ 即可. 在 $H = 0$ 时就完全变成(13)式.

考虑 H 很小的情形(起始磁化率 $H \rightarrow 0$), 将 σ_i 展开, 只取 H 的线性项, 则可以写成

$$\left. \begin{aligned} \sigma_1 &= \sigma - \chi g\mu_b H, \\ \sigma_2 &= \sigma + \chi g\mu_b H. \end{aligned} \right\} \quad (36)$$

$$\chi = -\frac{1}{g\mu_b} \left(\frac{\partial \sigma_1}{\partial H} \right)_{H \rightarrow 0} = \frac{1}{g\mu_b} \left(\frac{\partial \sigma_2}{\partial H} \right)_{H \rightarrow 0}, \quad (37)$$

于是平行磁化率为

$$\chi_{11} = \frac{N}{2} \mu_b g S \left(\frac{\partial \sigma_2}{\partial H} - \frac{\partial \sigma_1}{\partial H} \right)_{H \rightarrow 0} = N \mu_b^2 g^2 S \chi. \quad (38)$$

将 σ_1, σ_2 的表达式代入, 容易得到 χ 为

$$\left. \begin{aligned} \chi &= \frac{1}{\Theta} \frac{(1 - zJ\chi)}{\left(1 + 2\phi\left(\frac{1}{2}\right)\right)^2} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(\sinh \frac{zJ\sigma \sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}}{2\Theta} \right)^{-2} & S = \frac{1}{2} \\ &= \frac{[1 + 6\phi(1) + 6\phi^2(1)](1 - 2zJ\chi) \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(\sinh \frac{zJ\sigma \sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2}}{\Theta} \right)^{-2}}{2\Theta(1 + 3\phi(1) + 3\phi^2(1))^2} & S = 1 \\ &= \frac{\left(1 + 8\phi\left(\frac{3}{2}\right) + 28\phi^2\left(\frac{3}{2}\right) + 40\phi^3\left(\frac{3}{2}\right) + 20\phi^4\left(\frac{3}{2}\right)\right)(1 - 3zJ\chi)}{3\Theta \left[\left(1 + \phi\left(\frac{3}{2}\right)\right)^4 - \phi^4\left(\frac{3}{2}\right)\right]^2} \times \\ &\quad \times \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(\sinh \frac{3zJ\sigma}{2\Theta} \sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2} \right)^{-2} & S = \frac{3}{2} \\ &= \frac{(1 + 10\phi(2) + 45\phi^2(2) + 70\phi^3(2) + 185\phi^4(2) + 150\phi^5(2) + 50\phi^6(2))}{4\Theta[(1 + \phi(2))^5 - \phi^5(2)]^2} \times \\ &\quad \times (1 - 4zJ\chi) \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(\sinh \frac{2zJ\sigma}{\Theta} \sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2} \right)^{-2} & S = 2. \end{aligned} \right\} \quad (39)$$

其中的 $\phi(S)$ 和 σ 在上节中都已得到, 分别由(24)和(26)式给出. 在低温区域, 用通常的计算方法可以得出

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(\sinh \frac{zJS\sigma}{\Theta} \sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2} \right)^{-2} = b_1 \left(\frac{\Theta}{S\sigma} \right)^3 + b_2 \left(\frac{\Theta}{S\sigma} \right)^5 + b_3 \left(\frac{\Theta}{S\sigma} \right)^7 + \dots, \quad (40)$$

其中系数 $b_1, b_2, b_3, \dots$ 对 NaCl 型晶体 ($z = 6$) 为

$$\left. \begin{aligned} b_1 &= \frac{4}{\pi^2} \zeta(2) \left(\frac{\sqrt{3}}{2zJ} \right)^3 = \frac{2\sqrt{3}}{(2zJ)^3}, \\ b_2 &= \frac{16}{\pi^2} \zeta(4) \left(\frac{\sqrt{3}}{2zJ} \right)^5 = \frac{4\sqrt{3}}{5} \frac{\pi^2}{(2zJ)^5}, \\ b_3 &= \frac{158}{\pi^2} \zeta(6) \left(\frac{\sqrt{3}}{2zJ} \right)^7 = \frac{158\sqrt{3}}{35} \frac{\pi^4}{(2zJ)^7}; \end{aligned} \right\} \quad (41)$$

对 CsCl 型晶体 ($z = 8$) 为

$$\left. \begin{aligned} b_1 &= \frac{2}{\pi^2} \zeta(2) \left(\frac{2}{2zJ} \right)^3 = \frac{1}{3} \left(\frac{1}{zJ} \right)^3, \\ b_2 &= \frac{6}{\pi^2} \zeta(4) \left(\frac{2}{2zJ} \right)^5 = \frac{\pi^2}{15} \left(\frac{1}{zJ} \right)^5, \\ b_3 &= \frac{765}{4\pi^2} \zeta(6) \left(\frac{2}{2zJ} \right)^7 = \frac{17\pi^4}{84} \left(\frac{1}{zJ} \right)^7. \end{aligned} \right\} \quad (42)$$

于是在低温时磁化率为

$$\chi_{\parallel} = \xi \frac{Ng^2\mu_b^2}{(2zJS)^3} \Theta^2 + O(\Theta^4), \quad (43)$$

系数 ξ 与 S 及晶体结构有关. 表 6 列出了 $z = 6$ 情形的 ξ 值, 作为比较也列出了一些自旋波理论的结果.

表 6 系数 ξ 的数值 ($z = 6$)

S	ξ			
	本 文	Nakamura ^[12]	Kubo	Oguchi
1/2	2	$\frac{\sqrt{3}}{2} = 0.866$	$\frac{4}{3} = 1.33$	0.563
1	2.11	0.866	1.33	0.678
3/2	2.02	0.866	1.33	0.717
2	1.85 ₆	0.866	1.33	0.736

在 Neel 温度附近, $\phi(S)$ 由(27)式所给出. 同时

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(\sinh \frac{zJS\sigma}{\Theta} \sqrt{1 - \gamma_{\mathbf{k}}^2} \right)^{-2} \simeq \frac{2(S+1)^2\Theta^2}{9c''\Theta_N^2\sigma^2} \left(1 - \frac{3}{4} \frac{c''}{(S+1)^2} \left(\frac{\Theta_N}{\Theta} \right)^2 \sigma^2 \right).$$

代入(38), (39)式得到在 Neel 温度附近平行磁化率为

$$\chi_{\parallel} = N\mu_b^2 g^2 \frac{S(S+1)}{3c''(\Theta + \Theta_N)} \left(1 - 3 \frac{\Theta}{\Theta_N} \frac{\Theta_N - \Theta}{\Theta_N + \Theta} + \dots \right). \quad (44)$$

这里我们用了在 Neel 温度附近 σ 的表达式(29).

五

利用双时间格林函数,我們討論了 $S \geq \frac{1}{2}$ 情形各向同性的反铁磁性理論。从所得到的基态能 E_0 、次点陣的自发磁矩、轉变点温度 Θ_N 、平行磁化率等的結果表明,利用简单的近似可以得到与已有的一些理論基本上一致的結果。基态能量,低温区域次点陣的自发磁矩及平行磁化率的 Θ^2 , Θ^4 等項的系数等都与自旋波理論有一定的差异,这一差异随着 S 的增大而减小,这与文献[9]中得到的铁磁性理論的趋势是一致的。

本文中所用的格林函数切断近似的近似程度还很难断言。由所得結果看来,在低温时 S 愈大,則愈接近自旋波理論的結果。这一近似对能量要比磁化强度更坏些。在 Neel 点附近, S 愈大則愈差些。粗略地看,这样的近似可能相当于以平均的作用代替(或部分代替)了个别的关联作用。对于温度高时,自旋間接近于独立。我們的近似較好,但在低温下自旋間有較強的关联,因而近似也要差些;表现在所得結果与自旋波理論有差別。

Korringa^[13] 曾对 $S = \frac{1}{2}$ 的情形作过分析,他指出文献[8]的近似(与本文等价)对短波較适用。最近 Oguchi^[15] 和 Callen^[16] 都討論了 $S \geq \frac{1}{2}$ 的铁磁理論,他們改进了格林函数的切断近似。似乎在一定近似程度上更好地考虑了这种关联。但将这种近似用在反铁磁性时,我們发现,反铁磁性的基态能改正过大,由于他們所用的近似程度很难断言,而反铁磁理論目前还没有严格的理論可作比較,因而很难断言这样的結果是否更合理些,因此我們觉得要澄清这一問題,需要对这种近似作进一步的分析。

虽然所得的結果还不够理想,但用了比較简单的方法得到的理論在低温与高温基本上都符合这些区域中的理論,因此給出了在整个温度范围内近似适用的統一結果,从而提供了在比較寬广的温度范围内与实验比較的可能性。

作者感謝李蔭远先生所給的帮助。

参 考 文 献

- [1] Anderson, P. W., *Phys. Rev.*, **86** (1952), 694; Kubo, R., *Phys. Rev.*, **87** (1952), 568; *Rev. Mod. Phys.*, **25**(1953), 114; Ziman, J. M., *Proc. Phys. Soc.*, **65** (1952), 540; 548.
- [2] Dyson, F. J., *Phys. Rev.*, **102** (1956), 1217; 1230.
- [3] Oguchi, T., *Phys. Rev.*, **117** (1960), 117.
- [4] 李蔭远, *Phys. Rev.*, **84** (1951), 721; Nagamiya, T., Yosida, K., Kubo, R., *Adv. in Phys.*, **4** (1955), 1.
- [5] Brown, H. A., Lattinger, J. M., *Phys. Rev.*, **100** (1955), 685.
- [6] Боголюбов, Н. Н., Тябликов, С. В., *ДАН*, **126** (1959), 53; Тябликов, С. В., *Укр. матем. журнал*, **11** (1959), 287.
- [7] 孟宪振,蒲富恪,物理学报, **17**(1961), 214.
- [8] 蒲富恪, *ДАН*, **130** (1960), 1244; **131** (1960), 546.
- [9] Tahir-Kheli, R. A. ter Haar D., *Phys. Rev.*, **127** (1962), 88.
- [10] Davis, H. L., *J. Phys. Chem. Solids*, **23** (1962), 1348.
- [11] Boon, M. H., *Nuovo Cimento*, **21** (1961), 885.
- [12] Nakamura, T., *Prog. Theor. Phys.*, **7** (1952), 539.
- [13] Korringa, J., *Phys. Rev.*, **125** (1962), 1972.
- [14] Anderson, P. W., *Phys. Rev.*, **83** (1951), 1260.

- [15] Oguchi, T., Honma, A., *J. App. Phys.*, **34** (No. 4), part 2 (1963), 1153.
[16] Callen, H. B., *Phys. Rev.*, **130** (1963), 890.

APPLICATION OF THE GREEN'S FUNCTION METHOD TO THE THEORY OF ANTIFERROMAGNETISM FOR $S \geq 1/2$

CHENG CHIN-CHI PU FU-CHO

ABSTRACT

The Green's function method is applied to the study of isotropic antiferromagnetism for the case $S \geq \frac{1}{2}$. Expressions are obtained for the energy of the ground state, the sublattice spontaneous magnetization, and the parallel susceptibility. These results are compared with those of the spin wave theory for low temperatures. For high temperatures they are found in agreement with the well known results of other theories. Thus, the present theory gives a unified result which is approximately valid in the whole temperature range.