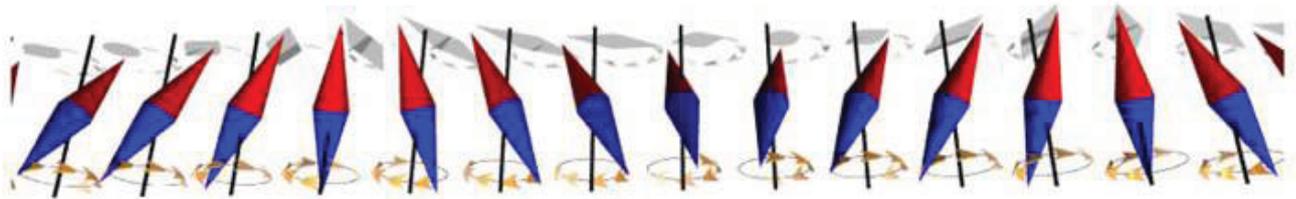


**Olaf Grotheer**

---

**Ab-initio Berechnung der Spinwellenspektren  
von Eisen, Kobalt und Nickel**

---



**Cuvillier Verlag Göttingen**

# Ab-initio Berechnung der Spinwellenspektren von Eisen, Kobalt und Nickel

Von der Fakultät Physik der Universität Stuttgart zur  
Erlangung der Würde eines Doktors der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.) genehmigte Abhandlung

vorgelegt von

**OLAF GROTHEER**

geboren in Stuttgart

Hauptberichter: Prof. Dr. M. Fähnle  
Mitberichter: Prof. Dr. G. Wunner  
Tag der mündlichen Prüfung: 20.02.2002



MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR METALLFORSCHUNG,  
INSTITUT FÜR PHYSIK, STUTTGART

Dezember 2001

Die Deutsche Bibliothek - CIP-Einheitsaufnahme

**Grotheer, Olaf:**

Ab-initio Berechnung der Spinwellenspektren von Eisen, Kobalt und Nickel  
/ vorgelegt von Olaf Grotheer. -

1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2001

Zugl.: Stuttgart, Univ., Diss., 2001

ISBN 3-89873-381-5

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2002

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0

Telefax: 0551-54724-21

[www.cuvillier.de](http://www.cuvillier.de)

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung  
des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile  
daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie)  
zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2001

Gedruckt auf säurefreiem Papier

ISBN 3-89873-381-5

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>7</b>
1.1	Einleitung . . . . .	7
1.2	Gliederung der Arbeit . . . . .	9
1.3	Die verwendeten Einheiten . . . . .	10
<b>I</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>13</b>
<b>2</b>	<b>Spinwellen in adiabatischer Näherung</b>	<b>15</b>
2.1	Einleitung . . . . .	15
2.2	Bewegungsgleichung für die magnetischen Momente . . . . .	16
2.3	Die Kopplungskonstanten . . . . .	17
2.4	Eigenwertgleichung für die Magnonen . . . . .	20
2.5	Kopplungskonstanten und Suszeptibilität . . . . .	23
2.6	Die Energie als Funktion der Richtungen der Momente . . . . .	26
2.7	Vernachlässigte Effekte . . . . .	28
<b>3</b>	<b>Dichtefunktionaltheorie</b>	<b>31</b>
3.1	Überblick . . . . .	31
3.2	Die Theoreme von Hohenberg und Kohn . . . . .	33
3.3	Die Kohn-Sham-Gleichungen . . . . .	41
3.4	Übergang zu gitterperiodischen Problemen . . . . .	44
3.5	Entkopplung von Orts- und Spinvariablen . . . . .	46
3.6	Zur Behandlung des Austausch-Korrelations-Funktional . . . . .	48
3.7	Dichtefunktionaltheorie mit Nebenbedingungen . . . . .	53
3.8	Sandratskiis Spinwellenformalismus . . . . .	59
3.9	Die adiabatische Näherung . . . . .	65
<b>4</b>	<b>Die LMTO-ASA-Methode</b>	<b>69</b>
4.1	Iterative Lösung der Kohn-Sham-Gleichungen . . . . .	69
4.2	Einführung in die LMTO-ASA-Methode . . . . .	72
4.3	Koordinatensysteme für die Spinfunktionen . . . . .	75
4.4	Konstruktion der Basisfunktionen . . . . .	77

4.5	Matrixelemente . . . . .	85
4.6	Spindichtematrix . . . . .	89
4.7	Der äußere Selbstkonsistenzzyklus . . . . .	91
4.8	Die Atomrechnung . . . . .	95
4.9	Zur Berechnung der Gesamtenergie . . . . .	98
<b>II</b>	<b>Die Frozen-Magnon-Methode</b>	<b>105</b>
<b>5</b>	<b>Einleitung</b>	<b>107</b>
<b>6</b>	<b>ab-initio Drehmoment</b>	<b>109</b>
6.1	Einleitung . . . . .	109
6.2	Das Hellmann-Feynman-Theorem . . . . .	110
6.3	Basissatzkorrekturen . . . . .	112
6.4	Test der <i>ab-initio</i> -Drehmomente . . . . .	132
<b>7</b>	<b>Frozen-Magnon-Methode</b>	<b>143</b>
7.1	Einleitung . . . . .	143
7.2	Einschub: Frozen-Magnon-Methode im Spezialfall einer einatomaren Basis	143
7.3	Spinwellenspektrum von Fe(bcc) . . . . .	144
7.4	Spinwellenspektrum von Ni(fcc) . . . . .	158
7.5	Spinwellenspektrum von Co(hcp) . . . . .	164
7.6	Spinquantisierungsachsen als Nebenbedingungen . . . . .	172
7.7	Vergleich mit Halilov et al. . . . .	176
7.8	Zwischenbilanz . . . . .	178
<b>III</b>	<b>Die Methode der Transversalen Suszeptibilität</b>	<b>181</b>
<b>8</b>	<b>Einleitung</b>	<b>183</b>
8.1	Die Idee . . . . .	183
8.2	Übersicht über Teil III . . . . .	183
8.3	Vergleich mit der Methode der Lagrange-Multiplikatoren . . . . .	184
<b>9</b>	<b>Zur Implementation äußerer Magnetfelder</b>	<b>185</b>
9.1	Einleitung . . . . .	185
9.2	Longitudinale Felder . . . . .	186
9.3	Transversale Felder . . . . .	186
9.4	Drehmomente und äußere Felder . . . . .	187
9.5	Test der Implementation externer Felder . . . . .	189

<b>10 Selbstkonsistente Spinquantisierungsachsen</b>	<b>193</b>
10.1 Erste Testrechnungen zur transversalen Suszeptibilität . . . . .	193
10.2 Zweite Testrechnungen . . . . .	194
10.3 Die Selbstkonsistenzbedingung . . . . .	200
10.4 Konsequenzen . . . . .	204
10.5 Ausblick . . . . .	205
<b>11 Transversale Suszeptibilität</b>	<b>207</b>
11.1 Einleitung . . . . .	207
11.2 Eisen . . . . .	207
11.3 Nickel . . . . .	214
11.4 Kobalt . . . . .	218
11.5 Weitere Auswertung: Spinwellensteifigkeit . . . . .	225
11.6 Rücktransformation in den Ortsraum . . . . .	229
<b>12 Diskussion</b>	<b>241</b>
12.1 Überblick über dieses Kapitel . . . . .	241
12.2 Vergleich mit experimentellen Resultaten . . . . .	241
12.3 Magnetic Force Theorem . . . . .	247
12.4 Constrained Local Moment . . . . .	250
12.5 Jenseits der adiabatischen Näherung . . . . .	253
12.6 Bewertung der gemachten Näherungsannahmen . . . . .	257
<b>13 Zusammenfassung / Summary</b>	<b>261</b>
13.1 Deutsche Fassung . . . . .	261
13.2 English version . . . . .	264
<b>IV Anhänge</b>	<b>269</b>
<b>A Die Brillouin-Zonen</b>	<b>271</b>
<b>B Tabellen aller Spinwellenresultate</b>	<b>273</b>
B.1 Eisen . . . . .	273
B.2 Nickel . . . . .	276
B.3 Kobalt . . . . .	281
<b>C Einige formale Details</b>	<b>289</b>
C.1 Zur Symmetrie der Kopplungskonstanten . . . . .	289
C.2 Eindeutigkeit der Potentialmatrix . . . . .	290
C.3 Nebenbedingungen für die Symmetrie . . . . .	293
C.4 Zum Umgang mit Wronski-Determinanten . . . . .	294
C.5 Zu den Momenten der LMTO-ASA-Methode . . . . .	296
C.6 Zu den IBSC-Matrixelementen . . . . .	298

<b>D</b>	<b>Integration über die Brillouin-Zone</b>	<b>301</b>
D.1	Problemstellung . . . . .	301
D.2	Der irreduzible Teil der Brillouin-Zone . . . . .	301
D.3	Verschmierungsmethoden . . . . .	304
D.4	Die Tetraedermethode . . . . .	307
D.5	Wahl des $\mathbf{k}$ -Punkt-Netzes für die Integration . . . . .	314
<b>E</b>	<b>Intraatomar Nichtkollinear...</b>	<b>319</b>
E.1	Grundidee . . . . .	319
E.2	Nötige Änderungen des Programms . . . . .	320
E.3	Tests der Implementation . . . . .	326

# Kapitel 1

## Einleitung

### 1.1 Einleitung

Ein naiver Blick auf die *ab-initio*-Elektronentheorie könnte zu dem Traum verleiten, man müsse nur den Computer einschalten, die Zusammensetzung des zu untersuchenden Materials eingeben und den Startknopf drücken – dann werde die Vielteilchen-Schrödingergleichung gelöst, Statistik getrieben und wir erhielten als Ergebnis der Rechnung die gesuchten Materialeigenschaften. Diese Vorstellung können wir auffassen als ein verspätetes Spiegelbild der Idee des Laplaceschen Dämons, die seit dem 18. Jahrhundert eine Herausforderung für unser Denken darstellt. In aller Schärfe könnte man die These so formulieren: Kennte man alle Anfangsbedingungen des Universums und könnte man die Bewegungsgleichungen integrieren, dann wäre man allwissend. Dieser Gedanke bleibt bis heute eine Herausforderung, unbeschadet dessen, daß wir mittlerweile die von heute aus betrachtet etwas krude wirkenden klassisch mechanischen Vorstellungen durch Quantenmechanik ersetzt haben, und wohl auch unbeschadet dessen, daß wir die Bewegungsgleichungen (mindestens im Regime sehr hoher Energien) nicht wirklich kennen.

Pragmatisch betrachtet bleibt diese Idee jedoch nur ein mehr oder weniger interessantes Gedankenspiel, denn ihrer Umsetzung stehen zwei prinzipielle Einwände entgegen. Zum einen sind wir zu jedem Zeitpunkt begrenzt durch die zur Verfügung stehende Rechenleistung. Daß diese rasant wächst (der Computer, auf dem der Großteil der Rechnungen dieser Arbeit durchgeführt wurde, wird von den jüngeren Doktoranden bereits müde belächelt), ändert nichts wesentliches, denn unsere Wünsche nach immer umfangreicheren Rechnungen können mindestens ebenso schnell mitwachsen.

Schwerer wiegt meines Erachtens ein zweiter Einwand: Selbst wenn wir über den mystischen Supercomputer verfügen würden, mit dem das reduktionistische Programm durchführbar wäre, so wären die Resultate doch nur Zahlen, nicht aber Erkenntnis<sup>1</sup>.

Um die Brücke von der mikroskopischen Theorie zu makroskopischen Materialeigenschaften zu schlagen, müssen wir daher einen gleichzeitig einfacheren und schwierigeren aber in gewisser Hinsicht auch lohnenderen Weg einschlagen: Wir müssen auf den verschie-

---

<sup>1</sup> „Forty-two“ said Deep-Thought, with infinite majesty and calm [4].

denen Längenskalen Modelle finden, die die auf diesen Skalen relevanten Eigenschaften beschreiben, und wir müssen Wege finden, die Parameter dieser Modelle aus der jeweils darunterliegenden mikroskopischen Theorie zu berechnen. Dieser Weg ist schwieriger, weil es physikalische Intuition erfordert, die richtigen Modelle zu finden. Er ist einfacher, indem er das in Strenge unlösbare Vielteilchenproblem vermeidet und uns stattdessen die Freiheit lässt, geeignete Näherungsannahmen einzuführen. Er ist lohnender, weil wir nur auf diesem Weg hoffen können, zu einem tieferen Verständnis der Materialeigenschaften zu kommen.

Auf das Problem des Ferromagnetismus angewandt, könnte man dieses Programm wie folgt umsetzen: Zunächst untersucht man auf der mikroskopischen Ebene das Vielelektronenproblem und kann so zum einen den Grundzustand des Systems und zum anderen seine niederenergetischsten magnetischen Anregungen charakterisieren, also das Spinwellenspektrum berechnen. In einem zweiten Schritt könnte man statistische Mechanik treiben für ein Modell, das auf der Kenntnis dieses Anregungsspektrums beruht. Dies würde thermodynamische Zustandsgleichungen (etwa die Magnetisierung als Funktion der Temperatur) für eine homogene Probe liefern. In weiteren Schritten müsste man Inhomogenitäten wie zum Beispiel Domängengrenzen oder Korngrenzen berücksichtigen, um zu einer Beschreibung einer realen makroskopischen Probe zu kommen.

Von diesem ehrgeizigen Programm kann diese Arbeit jedoch nur den allerersten Schritt ausführen – und selbst diesen nur teilweise. Sie stützt sich dabei auf zwei Forschungslinien, die an der Elektronentheoriegruppe von Professor Fähnle am Max-Planck-Institut für Metallforschung (MPI/MF) verfolgt werden.

Zum einen gibt es eine Tradition der *ab-initio* Berechnung von Kräften, die auf ein Atom wirken, das aus seiner Ruhelage im Kristall ausgelenkt wurde [5]. Kann man solche Kräfte berechnen, so ist es möglich, die *Phononenspektren* von Kristallen zu bestimmen; dies wurde von W. Frank für die Alkali-Metalle Lithium, Natrium und Kalium [6, 7] und von B. Meyer für die intermetallische Verbindung FeAl [8] demonstriert.

Zum anderen werden in der Gruppe seit langem auch magnetische Phänomene mit *ab-initio*-Rechnungen untersucht. In jüngerer Zeit wurde dabei verstärkt das Augenmerk auf Systeme mit spinverkippten Strukturen gerichtet. Die erste Arbeit dieser Art am MPI/MF war die Untersuchung von amorphem Eisen in der Dissertation von M. Liebs [9]; die Tradition wurde fortgesetzt in meiner Diplomarbeit [10] mit der Untersuchung magnetischer Vielfachschichten.

Die vorliegende Arbeit versucht nun, diese beiden Traditionslinien zu kombinieren; die Aufgabenstellung lautet: Implementiere im bestehenden Programmcode zur Behandlung spinverkippter Systeme ein Verfahren zur *ab-initio* Berechnung von Spinwellenspektren, das weitgehend analog zu den etablierten Verfahren für Phononenspektren aufgebaut wird, und teste die Implementation an den einfachsten elementaren Ferromagneten, Eisen, Kobalt und Nickel.

Dabei ist von vornherein klar, daß die Analogie zwischen Phononen- und Spinwellenspektren nicht beliebig weit trägt. Bei der Berechnung von Spinwellen betrachten wir mit einer Methode der Elektronentheorie Störungen im Elektronensystem und nicht wie bei den Phononen im System der Kerne. Dieser Unterschied bringt spezifische Vor- und Nachteile

mit sich. Ein Vorteil besteht darin, daß wir gewisse Symmetrieeigenschaften der Spinwellen ausnutzen können, um die elektronentheoretische Rechnung zu vereinfachen. Ein entscheidender Nachteil besteht darin, daß die adiabatische Näherung, die wir in Analogie zu den Phononenspektren machen werden, wesentlich schlechter gerechtfertigt ist als bei diesen.

## 1.2 Gliederung der Arbeit

*Teil I* legt die theoretischen Grundlagen dieser Arbeit. Dabei diskutiert Kapitel 2 die Bewegungsgleichung für die magnetischen Momente in adiabatischer Näherung. Als wichtiges Resultat ergibt sich der Zusammenhang zwischen den Kopplungskonstanten eines erweiterten Heisenberg-Modells und den Spinwellenenergien, Gleichung (2.28). Kapitel 3 stellt die Grundlagen der Dichtefunktionaltheorie dar. Die Darstellung ist so gewählt, daß von Anfang an die Theorie für spinverkippte Systeme diskutiert wird. Die Schwerpunkte sind so gesetzt, daß die theoretischen Überlegungen späterer Kapitel vorbereitet werden. Kapitel 4 ist schließlich der LMTO-ASA-Methode (in der von M. Liebs implementierten Form [9]) gewidmet. Da einige wichtige Details bei der Berechnung der Spinwellenspektren von Details des LMTO-ASA-Formalismus abhängen, wird dieser recht ausführlich dargestellt.

In *Teil II* werden mit sogenannten *Frozen-Magnon*-Rechnungen die Spinwellenspektren bestimmt. Die Vorgehensweise ist dabei eher konventionell; mit einer Ausnahme verwenden wir hier die gleichen physikalischen Ideen, wie sie auch in der parallel entstandenen Arbeit von Eschrig et al. [11, 12] verwendet werden. Die Ausnahme besteht darin, daß wir für die Frozen-Magnon-Konfigurationen nicht wie sonst üblich Gesamtenergien sondern Drehmomente berechnen. Letztere stellen das Analogon zu den Kräften dar, die bei der Berechnung der Phononenspektren benötigt werden. Die Herleitung der Formeln zur Berechnung der Drehmomente nimmt Kapitel 6 in Anspruch. Die eigentlichen Ergebnisse der Spinwellenrechnung werden in Kapitel 7 vorgestellt. Bei kritischer Betrachtung dieser Ergebnisse zeigt sich, daß eine übliche Annahme im Formalismus oft nicht gut erfüllt ist; es handelt sich dabei um die Annahme, man dürfe Nebenbedingungen für die Richtungen der atomaren magnetischen Momente näherungsweise dadurch implementieren, daß man die Spinquantisierungsachsen parallel zu den gewünschten Richtungen wählt.

Dies motiviert den in *Teil III* unternommenen Versuch, ein Verfahren zu konstruieren, das ohne diese problematische Annahme auskommt. Dies sollte prinzipiell sehr einfach möglich sein, indem man die selbstkonsistente Antwort des Elektronensystems auf geeignet gewählte Magnetfelder, letztlich also die Suszeptibilität  $\chi(\mathbf{q})$ , berechnet. Es zeigt sich jedoch, daß die in Kapitel 9 beschriebene geradlinige Umsetzung dieses Programms zu eklatant falschen Resultaten führt, wenn man die Spinquantisierungsachsen in der bisher allgemein üblichen Weise parallel zu den jetzt selbstkonsistenten Momentenrichtungen wählt. Dies zwingt uns in Kapitel 10 zunächst dazu, diese Wahl zu überdenken und zu korrigieren, bevor wir in Kapitel 11 erneut Spinwellenspektren berechnen können.

Kapitel 12 vergleicht unsere Ergebnisse sowohl mit experimentell gewonnenen Spinwellenspektren (inelastische Neutronenstreuung) als auch mit den Ergebnissen theoretischer Rechnungen, die auf anderen Ansätzen beruhen. Es zeigt sich, daß sowohl die adiabati-

sche Näherung als auch die lokale Spindichtenäherung die Anwendbarkeit unserer Methode spürbar beschränken. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung.

### 1.3 Die verwendeten Einheiten

Ich werde in dieser Arbeit versuchen, stets alle in Formeln auftretenden Naturkonstanten auszuschreiben, um weitgehend unabhängig von der Wahl eines speziellen Einheitensystems zu sein. Dennoch kann man an vielen Stellen erkennen, daß ich, wie in der Elektronentheorie allgemein üblich, *Rydberg-Einheiten* verwende. So gebe ich Energien typischerweise in Rydberg (Ry) oder Suszeptibilitäten in  $\mu_{\text{B}}^2/\text{Ry}$  an. Daher soll hier kurz das zugrundeliegende Einheitensystem erläutert werden.

**Definition der Rydberg-Einheiten:** Verwendet man zur Beschreibung der Elektrodynamik ein Gaußsches Einheitensystem<sup>2</sup>, so sind Länge, Zeit und Masse unabhängige Größen. Elektrische Ladung und andere Einheiten der Elektrodynamik sind dagegen über die Kraftgleichungen mit diesen verknüpft, so daß die Einheiten der elektrodynamischen Größen auf die der mechanischen zurückgeführt werden können.

Da drei unabhängige Größen vorliegen, können die Werte von drei Naturkonstanten willkürlich festgelegt werden, um ein geeignetes Einheitensystem zu definieren. Diejenige Wahl, die die *Rydberg-Einheiten* definiert, ist gegeben durch die Festlegung

$$\hbar = 1 \quad (1.1)$$

für das Plancksche Wirkungsquantum,

$$m = \frac{1}{2} \quad (1.2)$$

für die Ruhemasse des Elektrons und

$$e = \sqrt{2} \quad (1.3)$$

für die Elementarladung.

Die Einheiten aller anderen Größen ergeben sich daraus. So ist zum Beispiel der Bohr-Radius

$$a_0 = \frac{\hbar^2}{me^2} = 0.529\text{\AA} \quad (1.4)$$

die Längeneinheit und die Rydberg-Konstante

$$\text{Ry} = \frac{me^4}{2\hbar^2} = 2.18 \times 10^{-18} \text{ J} = 13.6058 \text{ eV} \quad (1.5)$$

Einheit der Energie.

---

<sup>2</sup>Vergleiche auch den entsprechenden Anhang im Jackson [13].

Auch die Einheit der Geschwindigkeit liegt indirekt fest. Sie ist gegeben durch  $e^2/2\hbar$  und entspricht bis auf einen Faktor 2 der Geschwindigkeit eines als klassisches Teilchen betrachteten Elektrons auf der 1s-Bahn um den Wasserstoff-Kern. Da die Geschwindigkeitseinheit festliegt, ist man in der Wahl der Lichtgeschwindigkeit  $c = 2.998 \times 10^8 m/s$  nicht mehr frei. Sie nimmt den Zahlenwert

$$\frac{c}{e^2/2\hbar} = \frac{2}{\alpha} = 274.072 \quad (1.6)$$

an, wobei  $\alpha = 1/137.036$  die Feinstrukturkonstante ist.

**Abweichende Längeneinheiten:** Neben den Bohr-Radius  $a_0$  treten je nach Kontext weitere Längen, die als Längeneinheiten verwendet werden. Diese sind

- im Kontext der Berechnung des Austausch-Korrelations-Potentials der Elektronengasparameter  $r_s$ , definiert durch  $\frac{4\pi}{3}r_s^3 = \Omega_{EZ}/N_e$  für  $N_e$  Elektronen in der Einheitszelle mit Volumen  $\Omega_{EZ}$ .
- im Kontext der Berechnung von Strukturkonstanten der mittlere Wigner-Seitz-Radius  $w$ , definiert als mittlerer Radius der Atomkugeln. (Für  $N_A$  Atome in der Einheitszelle mit Volumen  $\Omega_{EZ}$  lautet die Definition  $\frac{4\pi}{3}w^3 = \Omega_{EZ}/N_A$ .)
- die Gitterkonstante  $a$  des Kristallgitters.

Entsprechend verwende ich für Wellenvektoren - sowohl für Spinwellen als auch für Blochwellen - die Einheit  $2\pi/a$ , da dann die Koordinaten der hochsymmetrischen Punkte in der Brillouin-Zone durch einfache Brüche ausgedrückt werden können.

**Abweichende Ladungseinheiten:** Während es nach der Definition der Rydberg-Einheiten konsequent wäre,  $e/\sqrt{2}$  als Ladungseinheit zu verwenden, werden in der Praxis Ladungsüberträge ausgerechnet, indem Elektronen gezählt werden; man verwendet dort also doch die Elementarladung  $e$  als Einheit.

**Abweichende Einheiten für magnetisches Moment und Suszeptilität:** Prinzipiell könnte man aus den Rydberg-Einheiten eine Einheit für das magnetische Moment konstruieren. Es ist jedoch anschaulicher und wesentlich einfacher, das Bohrsche Magneton

$$\mu_B = \frac{e\hbar}{2mc} = 9.274 \times 10^{-21} \text{ergG}^{-1} = 9.274 \times 10^{-24} \text{JT}^{-1} \quad (1.7)$$

als Einheit zu wählen. Die Einheit des Magnetfeldes ist dann

$$1 \frac{\text{Ry}}{\mu_B} = 2.35 \times 10^9 \text{G} = 2.35 \times 10^5 \text{T} \quad . \quad (1.8)$$

Definiert man die Suszeptibilität als induziertes magnetisches Moment pro Einheitszelle und angelegtem Feld, so ist ihre Einheit

$$1 \frac{\mu_B^2}{\text{Ry}} = 3.946 \times 10^{-6} \text{Å}^3 \quad . \quad (1.9)$$

Es ist üblicher, die Suszeptibilität als induzierte Magnetisierung pro angelegtem Feld zu definieren; man teilt also noch durch das Volumen der Einheitszelle und erhält eine Suszeptibilität, die dimensionslos ist, da Magnetisierung und Feldstärke die gleiche Einheit haben.

**Teil I**

**Theoretische Grundlagen**



# Kapitel 2

## Spinwellen in adiabatischer Näherung

### 2.1 Einleitung

Es ist das Ziel dieses Kapitels, Verfahren zur Berechnung der Spinwellenspektren anzugeben. Dabei wollen wir uns von der Analogie zur Berechnung der Phononenspektren [7] leiten lassen. Ich erinnere daher kurz an die Leitgedanken dort.

Zur Berechnung der Phononenspektren setzt man zunächst die Energie als Funktion der Kernkoordinaten an,

$$E = E(\{\mathbf{R}_i\}) \quad . \quad (2.1)$$

In diesem Ansatz ist implizit die *adiabatische Näherung* enthalten, denn andernfalls müssten wir zulassen, daß die Energie auch von den elektronischen Freiheitsgraden des Systems abhängt.

Ausgehend von der Gesamtenergie (2.1) lautet die Bewegungsgleichung für die Kerne

$$M_i \ddot{\mathbf{R}}_i = - \frac{\partial E}{\partial \mathbf{R}_i} \quad . \quad (2.2)$$

Beschränkt man sich auf kleine Auslenkung um die Ruhelage, so kann man das Potential *harmonisch* nähern. Die Bewegungsgleichung (2.2) wird dadurch linear. Ihre Eigenmoden sind Phononen.

Sind in einem ferromagnetischen System Spinwellen angeregt, so präzidieren die atomaren magnetischen Momente um die Richtung der Grundzustandsmagnetisierung. An die Stelle der Kernkoordinaten als relevanter Koordinaten treten daher jetzt wahlweise die atomaren magnetischen Momente  $\mathbf{M}_i$  oder ihre Richtungen  $\mathbf{n}_i = \mathbf{M}_i/|\mathbf{M}_i|$ . Das nächste Ziel besteht daher darin, für diese Momente eine Bewegungsgleichung abzuleiten.

## 2.2 Bewegungsgleichung für die atomaren magnetischen Momente

### 2.2.1 Die Energie als Funktion der Momente

Um eine Bewegungsgleichung abzuleiten, in der die atomaren magnetischen Momente die freien Variablen sind, muß zunächst die Energie als Funktion der Momente geschrieben werden:

$$E = E(\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}) \quad . \quad (2.3)$$

Wenn wir den Zustand des betrachteten Ferromagneten nur über seine Momente  $\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}$  charakterisieren, so sind eine große Zahl von inneren Freiheitsgraden aus der Betrachtung herausgefallen. Diese drastische Vereinfachung ist dann gerechtfertigt, wenn man unterstellen darf, daß die inneren Freiheitsgrade schnell relaxieren im Vergleich zur langsameren Bewegung der Momente (adiabatische Näherung).

Die Energie  $E$  aus (2.3) kann dann formal aufgefasst werden als

$$E(\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}) = \min_{\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}} E[\text{innere Freiheitsgrade}] \quad , \quad (2.4)$$

wobei jeweils über alle diejenigen Zustände zu minimieren ist, die die gewünschten atomaren Momente liefern. Wie in einem späteren Kapitel gezeigt werden wird, kann die Berechnungsvorschrift (2.4) realisiert werden über eine ab-initio elektronentheoretische Rechnung mit den Methoden der spinverkippten Dichtefunktionaltheorie. Die Betrachtungen in diesem Kapitel sind jedoch weitgehend unabhängig davon, wie  $E = E(\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\})$  praktisch berechnet wird.

### 2.2.2 Drehmomente und klassische Bewegungsgleichung

Wenn eine Richtungsänderung eines magnetischen Momentes,  $d\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \perp \mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}$ , zu einer Veränderung der Gesamtenergie führt, so kann man dies in der Sprache der klassischen Mechanik beschreiben durch ein Drehmoment

$$\mathbf{T}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \stackrel{\text{def}}{=} \frac{\partial E}{\partial \mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}} \times \mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \quad , \quad (2.5)$$

das auf dieses magnetischen Moment wirkt. Wenn das magnetische Moment von Elektronenspins getragen wird, so hat das gyromagnetische Verhältnis den Wert  $-2\mu_B/\hbar$ , und wir erhalten die Bewegungsgleichung

$$\frac{d\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}}{dt} = - \left( \frac{2\mu_B}{\hbar} \right) \mathbf{T}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = - \left( \frac{2\mu_B}{\hbar} \right) \frac{\partial E}{\partial \mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}} \times \mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \quad . \quad (2.6)$$

Man kann Gleichung (2.6) auch aus der Quantenmechanik in adiabatischer Näherung herleiten. Da dazu die Grundlagen der Dichtefunktionaltheorie benötigt werden, verschiebe ich diese Herleitung auf später (Kapitel 3.9).

## 2.3 Die Kopplungskonstanten

Magnonen sind per Definition kleine Anregungen aus dem ferromagnetischen Grundzustand. Daher liegt es nahe, zu ihrer Berechnung zunächst eine Taylorentwicklung der Energie  $E = E(\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\})$  um den Grundzustand vorzunehmen.

### 2.3.1 Der Grundzustand

Im Rahmen der Beschreibung mit Hilfe der Dichtefunktionaltheorie werden sowohl die Spin-Bahn-Kopplung und damit die resultierende Kristallanisotropie als auch alle Streufeldeffekte vernachlässigt. Auf dieser Beschreibungsebene sind daher die Richtungen des Kristallgitters und die der magnetischen Momente entkoppelt. Daher kann man strenggenommen nicht von *dem* Grundzustand sprechen: Wenn in einem Grundzustand die Momentenkonfiguration gekennzeichnet ist durch  $\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = |\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}|\mathbf{e}$ , so erhält man entartete Zustände, indem man die Richtung  $\mathbf{e}$  durch eine beliebige andere Richtung ersetzt. Dennoch muß für das folgende einer der Grundzustände ausgewählt werden, weil um diesen Zustand eine Taylor-Entwicklung durchgeführt werden soll. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wähle ich den Zustand mit  $\mathbf{e} = \mathbf{e}_z$  aus.

Der Grundzustand ist also gekennzeichnet durch die Momentenkonfiguration

$$\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = M_{\mathbf{R}}^0 \mathbf{e}_z \quad , \quad (2.7)$$

wobei noch  $M_{\mathbf{R}}^0$  als Betrag der Grundzustandsmomente eingeführt wurde.

### 2.3.2 Taylor-Entwicklung der Gesamtenergie

Die Taylor-Entwicklung der Gesamtenergie um den Grundzustand lautet

$$\begin{aligned} E(\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}) &= E_0 \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{R}\mathbf{T}} \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} (\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} - M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^0 \mathbf{e}_z)^t \mathbf{A}_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} (\mathbf{M}_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} - M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^0 \mathbf{e}_z) \\ &+ O((\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} - M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^0 \mathbf{e}_z)^3) \quad . \end{aligned} \quad (2.8)$$

Dabei wurde die Matrix der Kopplungskonstanten  $\mathbf{A}$  eingeführt mit der Definition

$$A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{ii'} \stackrel{\text{def}}{=} \left. \frac{\partial^2 E}{\partial M_{\mathbf{R}+\mathbf{T},i} \partial M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}',i'}} \right|_{\text{Grundzustand}} \quad , \quad (2.9)$$

wobei die Indizes  $i, i'$  die drei kartesischen Komponenten durchlaufen.

Aufgrund von Gleichung (2.9) sind die Kopplungskonstanten reell und symmetrisch im Sinne von

$$A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{ii'} = A_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}',\mathbf{R}+\mathbf{T}}^{i'i} \quad . \quad (2.10)$$

Mit Symmetrieargumenten läßt sich die Anzahl unabhängiger Kopplungskonstanten erheblich reduzieren. Dies wird in den folgenden Kapiteln dargestellt.

### 2.3.3 Entkopplung von Ort und Spin

Im Rahmen der Dichtefunktionaltheorie werden Spin-Bahn-Kopplung und Streufeldefekte vernachlässigt. Gleichzeitig werden bei der Berechnung der magnetischen Momente nur der Elektronenspin, nicht aber die Bahnmomente berücksichtigt. Insgesamt ergibt sich damit eine Entkopplung von Spin und Ortskoordinaten, die als Symmetrieeigenschaft der Gesamtenergie ausgedrückt werden kann: Setzt man

$$\mathbf{M}'_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = \hat{\mathbf{R}}\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}, \quad \text{mit } \hat{\mathbf{R}} \in O(3), \quad (2.11)$$

wobei  $\hat{\mathbf{R}}$  eine beliebige Drehung, Spiegelung oder Drehspiegelung ist, dann bleibt die Energie unverändert:  $E(\{\mathbf{M}'_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}) = E(\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\})$ .

Betrachten wir zunächst speziell Drehungen um die  $z$ -Achse sowie Spiegelungen an Ebenen, die die  $z$ -Achse enthalten, so ergibt sich erstens, daß alle Nebendiagonalelemente der Matrizen  $\mathbf{A}_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}$  verschwinden, und zweitens, daß die Hauptdiagonalelemente  $A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{xx}$  und  $A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{yy}$  gleich sind (Ich übergehe den relativ einfachen Beweis). Damit kann die Matrix  $\mathbf{A}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}$  in der Form

$$\begin{aligned} \mathbf{A}_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} &= \begin{pmatrix} A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{xx} & A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{xy} & A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{xz} \\ A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{yx} & A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{yy} & A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{yz} \\ A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{zx} & A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{zy} & A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{zz} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{\parallel} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.12)$$

geschrieben werden. Für jedes Atompaar  $(\mathbf{R} + \mathbf{T}, \mathbf{R}' + \mathbf{T}')$  hat man es also nur mit *zwei* unabhängigen Konstanten  $A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{\perp}$  und  $A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{\parallel}$  zu tun.

Damit kann Gleichung (2.8) in der einfacheren Form

$$\begin{aligned} E(\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}) &= E_0 \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{R}\mathbf{T}} \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{\perp} (M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^x + M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^y) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{R}\mathbf{T}} \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^{\parallel} (M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^z - M_{\mathbf{R}}^0) (M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^z - M_{\mathbf{R}'}^0) \\ &+ O((\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} - M_{\mathbf{R}}^0 \mathbf{e}_z)^3) \end{aligned} \quad (2.13)$$

geschrieben werden<sup>1</sup>.

<sup>1</sup>Auf ähnliche Weise wie bei den Termen zweiter Ordnung können wir auch analysieren, welche Terme dritter Ordnung auftreten können. Dabei ergibt sich, daß nur Terme der Form  $B_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}',\mathbf{R}''+\mathbf{T}''} (M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^x + M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^y) (M_{\mathbf{R}''+\mathbf{T}''}^z - M_{\mathbf{R}''}^0)$  sowie  $C_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}',\mathbf{R}''+\mathbf{T}''} (M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^z - M_{\mathbf{R}}^0) (M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^z - M_{\mathbf{R}'}^0) (M_{\mathbf{R}''+\mathbf{T}''}^z - M_{\mathbf{R}''}^0)$  auftreten. Im Kontext dieser Arbeit beschränken wir uns jedoch auf die Terme zweiter Ordnung.

### 2.3.3.1 Eine Summenregel für die Kopplungskonstanten

Betrachten wir einen ferromagnetischen Grundzustand, bei dem alle Momente in eine andere als die  $z$ -Richtung zeigen, das heißt

$$\begin{pmatrix} M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x \\ M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y \\ M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^z \end{pmatrix} = M_{\mathbf{R}}^0 \begin{pmatrix} \sin \vartheta \cos \varphi \\ \sin \vartheta \sin \varphi \\ \cos \vartheta \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

mit von  $\mathbf{R}$  unabhängigen Winkeln  $\vartheta$  und  $\varphi$ , so muß auch diese Konfiguration eine Gleichgewichtslage des Systems sein, so daß für diese Konfiguration alle Energieableitungen  $\partial E / \partial \mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}$  verschwinden. Diese Forderung führt auf eine einfache Summenregel, die die Kopplungskonstanten  $A^\perp$  erfüllen müssen:

$$\forall \mathbf{R}, \mathbf{T} : \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}+\mathbf{T}, \mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^\perp M_{\mathbf{R}'}^0 = 0 \quad . \quad (2.15)$$

Die Kopplungskonstanten sind also nicht alle unabhängig voneinander; man könnte Gleichung (2.15) benutzen, um die „Selbstwechselwirkungskonstanten“  $A_{\mathbf{R}+\mathbf{T}, \mathbf{R}+\mathbf{T}}^\perp$  auszudrücken über eine Summe über alle anderen Konstanten,

$$A_{\mathbf{R}+\mathbf{T}, \mathbf{R}+\mathbf{T}}^\perp = -\frac{1}{M_{\mathbf{R}}^0} \sum'_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}+\mathbf{T}, \mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^\perp M_{\mathbf{R}'}^0 \quad , \quad (2.16)$$

wobei die Summe nur über Terme  $\mathbf{R}' + \mathbf{T}' \neq \mathbf{R} + \mathbf{T}$  läuft.

## 2.3.4 Symmetrieeigenschaften des Kristallgitters

Bis hierher wurden nur Symmetrieeigenschaften im Spinraum diskutiert, während noch nicht berücksichtigt wurde, daß die Kernorte  $\mathbf{R} + \mathbf{T}$  Orte eines Kristallgitters bilden. Es liegen damit Symmetrieeigenschaften im Ortsraum vor, die die Anzahl unabhängiger Kopplungskonstanten  $A$  weiter reduzieren.

### 2.3.4.1 Allgemeine Diskussion

Sei  $g$  ein Element der Euklidischen Gruppe, das den Kristall selber sowie seinen magnetischen Grundzustand invariant läßt, das heißt es gelte

$$M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^0 = M_{g^{-1}(\mathbf{R}+\mathbf{T})}^0 \quad , \quad (2.17)$$

wobei die Wirkung von  $g$  auf die Ortskoordinate  $\mathbf{R} + \mathbf{T}$  in einer Drehung, einer Spiegelung, einer Translation oder einer Kombination der genannten Operationen besteht.

Betrachtet man nun zwei angeregte Zustände  $\{\mathbf{M}\}$  sowie  $\{\mathbf{M}'\}$ , die durch die Wirkung der Symmetrieoperation  $g$  auseinander hervorgehen, für die also

$$\mathbf{M}'_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = \mathbf{M}_{g^{-1}(\mathbf{R}+\mathbf{T})} \quad (2.18)$$

gilt, so haben beide Zustände offensichtlich die gleiche Energie

$$E(\{\mathbf{M}'\}) = E(\{\mathbf{M}\}) \quad . \quad (2.19)$$

Für die durch die Taylor-Entwicklung (2.13) definierten Kopplungskonstanten folgt daraus

$$A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^\perp = A_{g(\mathbf{R}+\mathbf{T}),g(\mathbf{R}'+\mathbf{T}')}^\perp \quad . \quad (2.20)$$

Symmetrieeigenschaften des Kristalls reduzieren daher die Zahl der unabhängigen Kopplungskonstanten  $A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^\perp$ .

### 2.3.4.2 Translationssymmetrie

Spezialisieren wir zunächst auf den Fall, daß  $g$  eine reine Translation um den Gittervektor  $\boldsymbol{\tau}$  ist. Aus (2.20) folgt für diesen Fall  $A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^\perp = A_{\mathbf{R}+\mathbf{T}+\boldsymbol{\tau},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'+\boldsymbol{\tau}}^\perp$ . Die Kopplungskonstanten hängen also nicht von beiden Translationsvektoren  $\mathbf{T}$  und  $\mathbf{T}'$  ab, sondern nur ihrer Differenz  $\mathbf{T}' - \mathbf{T}$ . Daher wechseln wir die Notation und ersetzen im folgenden

$$A_{\mathbf{R}+\mathbf{T},\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^\perp \rightarrow A_{\mathbf{R},\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T}) \quad . \quad (2.21)$$

### 2.3.4.3 Weitere Symmetrieeigenschaften

In der Regel wird der Kristall neben den primitiven Translationen noch über weitere Symmetrieeigenschaften verfügen. Diese reduzieren die Anzahl der unabhängigen Konstanten  $A_{\mathbf{R},\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T})$  weiter. Dies wird detaillierter in Anhang C.1 diskutiert.

## 2.4 Eigenwertgleichung für die Magnonen

Im gitterperiodischen Kristall lautet die Bewegungsgleichung (2.6) mit der Entwicklung (2.13)

$$\frac{d\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}}{dt} = \frac{2\mu_B}{\hbar}\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \times \left( \begin{array}{l} \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R},\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T})M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^x + O(\Delta\mathbf{M}^2) \\ \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R},\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T})M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^y + O(\Delta\mathbf{M}^2) \\ \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R},\mathbf{R}'}^\parallel(\mathbf{T}' - \mathbf{T})(M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^z - M_{\mathbf{R}'}^0) + O(\Delta\mathbf{M}^2) \end{array} \right) \quad . \quad (2.22)$$

Setzt man nun explizit für  $\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}$  kartesische Komponenten ein, wertet das Kreuzprodukt aus und beschränkt sich auf Terme führender, das heißt erster Ordnung in  $\Delta\mathbf{M}_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} = \mathbf{M}_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} - M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^0\mathbf{e}_z$ , so ergeben sich die Bewegungsgleichungen

$$\begin{aligned} \frac{dM_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x}{dt} &= -\frac{2\mu_B M_{\mathbf{R}}^0}{\hbar} \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R},\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T})M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^y + O(\Delta\mathbf{M}^2) \\ \frac{dM_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y}{dt} &= +\frac{2\mu_B M_{\mathbf{R}}^0}{\hbar} \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R},\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T})M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^x + O(\Delta\mathbf{M}^2) \end{aligned} \quad (2.23)$$

$$\frac{dM_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^z}{dt} = O(\Delta\mathbf{M}^2) \quad . \quad (2.24)$$

Wir suchen nun Lösungen in Form von Spinwellen. Daher liegt es nahe, den Ansatz

$$M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x(t) - iM_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y(t) = u_{\mathbf{R}} \exp(i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{T} - \omega t)) \quad (2.25)$$

zu probieren. Dabei stehen die  $u_{\mathbf{R}}$  für die noch zu bestimmenden komplexen Amplituden der Spinwellen. Einsetzen liefert

$$\omega u_{\mathbf{R}} = \frac{2\mu_{\text{B}}M_{\mathbf{R}}^0}{\hbar} \sum_{\mathbf{R}'\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\mathbf{T}' - \mathbf{T}) \exp(i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{T}' - \mathbf{T})) u_{\mathbf{R}'} \quad (2.26)$$

Führt man noch mit

$$A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\mathbf{q}) = \sum_{\boldsymbol{\tau}} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\boldsymbol{\tau}) \exp(i\mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\tau}) \quad (2.27)$$

die fouriertransformierten Kopplungskonstanten ein, so erhält man die Eigenwertgleichung

$$\hbar\omega(\mathbf{q})u_{\mathbf{R}} = 2\mu_{\text{B}}M_{\mathbf{R}}^0 \sum_{\mathbf{R}'} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\mathbf{q})u_{\mathbf{R}'} \quad (2.28)$$

oder

$$\hbar\omega(\mathbf{q}) = 2\mu_{\text{B}} \text{eigval} \left[ A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\mathbf{q}) \sqrt{M_{\mathbf{R}}^0 M_{\mathbf{R}'}^0} \right] \quad (2.29)$$

Um zu einem gegebenen Wellenvektor  $\mathbf{q}$  alle Magnonen-Frequenzen zu erhalten, muß man also zunächst die fouriertransformierten Kopplungskonstanten  $A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\mathbf{q})$  bestimmen und dann das Eigenwertproblem (2.28) lösen.

Da die Matrix  $\mathbf{A}^{\perp}(\mathbf{q})$  aufgrund von Glg. (2.10) hermitesch ist, ist die Zahl der Zweige im Magnonenspektrum gleich der Anzahl der Atome in der Einheitszelle. Dies ist ein deutlicher Unterschied zu Phononenspektren, bei denen man pro Atom in der Einheitszelle drei Zweige erhält. Die Ursache für diesen Unterschied liegt darin, daß wir zu Beginn der Diskussion der Theorie der Magnonenspektren zwar drei Freiheitsgrade pro Atom für den Vektor des atomaren magnetischen Moments eingeführt haben, von denen jedoch jeweils zwei unterwegs herausgefallen sind: Die longitudinale  $z$ -Komponente koppelt (in führender Ordnung von  $\Delta\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}$ ) nicht an die transversalen Komponenten, und diese lassen sich jeweils elegant zu einem einzigen komplexen Freiheitsgrad  $M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x - iM_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y$  zusammenfassen.

### 2.4.1 Brillouin-Zone und irreduzibler Teil der Brillouin-Zone

Aus dem Ansatz für die Spinwellen (2.25) folgt unmittelbar, daß es genügt,  $\mathbf{q}$  auf die erste Brillouin-Zone (BZ) zu beschränken.

Oft liegen neben den primitiven Translationen noch weitere Symmetrioperationen  $g = \{\hat{\mathbf{R}}(g)|\boldsymbol{\tau}(g)\}$  vor<sup>2</sup>. Diese zeigen sich in Symmetrien im Spinwellenspektrum: Hat

<sup>2</sup>Dabei steht die Notation  $g = \{\hat{\mathbf{R}}(g)|\boldsymbol{\tau}(g)\}$  für eine kombinierte Operation, bestehend aus einer orthogonalen 3x3-Matrix  $\hat{\mathbf{R}}(g) \in O(3)$  (Drehung, Spiegelung oder Drehspiegelung) und aus einem Translationsvektor  $\boldsymbol{\tau}(g)$ , der nicht zum Translationsgitter des Kristalls gehören muß.

man eine Spinwelle  $\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}(t)\}$  zum Wellenvektor  $\mathbf{q}$  und zur Eigenfrequenz  $\omega(\mathbf{q})$  gefunden, so erhält man durch Anwenden der Symmetrieoperation  $g$  eine weitere Spinwelle  $\mathbf{M}'_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}(t) = \mathbf{M}_{g^{-1}\mathbf{R}+\mathbf{T}}(t)$ , die die gleiche Eigenfrequenz hat, aber zum Wellenvektor  $\mathbf{q}' = \hat{\mathbf{R}}(g)\mathbf{q}$  gehört. Da die Gesamtheit aller Symmetrieoperationen eine Gruppe  $\mathcal{G}$  bildet, kann man jeden Wellenvektor  $\mathbf{q}$  zu einem ganzen Stern  $\{\mathbf{q}'|\exists g \in \mathcal{G}|\mathbf{q}' = g\mathbf{q}\}$  ergänzen. Die Wellenvektoren eines Sterns heißen *äquivalent*. Da sich bei äquivalenten Wellenvektoren die gleichen Eigenfrequenzen ergeben, genügt es in der Praxis, jeweils nur für einen Repräsentanten jedes Sterns die Eigenfrequenzen zu berechnen. Man definiert daher als *irreduziblen Teil der Brillouin-Zone* (IBZ) eine solche Teilmenge der BZ, die aus jedem Stern genau einen Repräsentanten enthält.

Dieses Konzept der irreduziblen Brillouin-Zone ist identisch mit dem Konzept der IBZ im Fall elektronischer Wellenvektoren. Man erhält daher für die Spinwellen-Wellenvektoren die gleiche IBZ wie für die elektronischen Wellenvektoren in der Bandstrukturrechnung des entsprechenden ferromagnetischen Grundzustands.

Die Brillouin-Zonen aller Bravais-Gitter sind zum Beispiel in Anhang E3 von [14] aufgeführt.

### 2.4.2 Kramers-Entartung

Ist die Spinwelle  $\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}(t)$  Lösung der Eigenwertgleichung zur Eigenfrequenz  $\omega(\mathbf{q})$  und zum Wellenvektor  $\mathbf{q}$ , so ist auch die *zeitumgekehrte* Spinwelle  $\mathbf{M}'_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}(t) = (\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}(-t))^*$  Eigenlösung zur gleichen Frequenz aber zum Wellenvektor  $\mathbf{q}' = -\mathbf{q}$ . Daher sind im Spinwellenspektrum die Wellenvektoren  $+\mathbf{q}$  und  $-\mathbf{q}$  stets äquivalent. Dies ist analog zur *Kramers-Entartung* bei Bandstrukturrechnungen.

### 2.4.3 Der Sonderfall $\mathbf{q} = 0$

Am  $\Gamma$ -Punkt ergibt sich stets eine Spinwelle mit verschwindender Frequenz  $\omega(\mathbf{q} = 0) = 0$ . Sie hat die Amplituden

$$u_{\mathbf{R}} = M_{\mathbf{R}}^0 \quad . \quad (2.30)$$

Man kann diese Behauptung formal leicht verifizieren, indem man (2.30) in die Eigenwertgleichung (2.28) einsetzt und die Summenregel (2.15) ausnutzt. Anschaulich beschreibt (2.30) eine homogene Rotation aller magnetischen Momente, die in unserem Modell (keine Kristallanisotropie) keine Energie kostet.

Diese Eigenschaft der Spinwellenspektren ist in Analogie zu den Phononenspektren zu sehen, bei denen für die akustischen Zweige  $\omega(\mathbf{q} = 0) = 0$  gilt. Die Auslenkungsmuster der Kerne für diese Phononen beschreiben gerade eine homogene Translation des gesamten Kristalls in eine der Raumrichtungen.

## 2.5 Zusammenhang der Kopplungskonstanten mit der Suszeptibilität

### 2.5.1 Form der betrachteten Felder

Allgemein ist die Suszeptibilität definiert über die lineare Antwort in der Magnetisierung des Systems als Reaktion auf von außen angelegte Felder. Für Felder beliebiger Ortsabhängigkeit läßt sich der Zusammenhang schreiben als

$$\mathbf{m}_{\text{ind}}(\mathbf{r}) = \int \chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{B}_{\text{ext}}(\mathbf{r}') d^3 r' \quad , \quad (2.31)$$

wobei die Matrix  $\chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  als Suszeptibilität bezeichnet wird.

Wir befinden uns jedoch in diesem Kapitel auf einer gröberen Beschreibungsebene, in der wir den Zustand des Systems charakterisieren durch Angabe nur der atomaren magnetischen Momente  $\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}$ . Da jedes atomare Moment durch Integration über die Magnetisierung über das diesem Moment zugeordnete Volumen  $\Omega_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}$  berechnet wird, mitteln sich Details der Ortsabhängigkeit der induzierten Spindichte heraus. Es liegt daher nahe, auch auf der Seite des angelegten Feldes von Details der Ortsabhängigkeit abzusehen und sich auf solche Felder zu beschränken, die innerhalb eines Atomvolumens konstant sind. Mit den Funktionen

$$\Theta_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1 & \text{für } \mathbf{r} \in \Omega_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad , \quad (2.32)$$

die jeweils die den einzelnen Atomen zugeordneten Teilvolumina auswählen, kann man die hier betrachtete Klasse von Feldern schreiben als

$$\mathbf{B}_{\text{ext}}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{R}\mathbf{T}} \mathbf{B}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \Theta_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}(\mathbf{r}) \quad ; \quad (2.33)$$

dabei ist  $\mathbf{B}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}$  der Wert des Feldes, der im Volumen des Atoms  $\mathbf{R} + \mathbf{T}$  angenommen wird.

Für die Energie der Momente  $\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}$  in diesem Feld erhält man den einfachen Ausdruck

$$E_{\text{mag}} = - \sum_{\mathbf{R}\mathbf{T}} \mathbf{B}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \quad . \quad (2.34)$$

Die besondere Einfachheit dieses Ausdrucks ist der Grund, warum wir uns auf intraatomar konstante Felder beschränkt haben. Wenn das Feld intraatomar ortsabhängig wäre, so würde die Energie nicht nur vom gesamten atomaren Moment abhängen, sondern auch davon, wie die Magnetisierung über das Atomvolumen verteilt ist. Diese Information liegt aber auf der gewählten Beschreibungsebene nicht vor.

### 2.5.2 Diskussion im Ortsraum

In Anwesenheit eines äußeren Feldes der Form (2.33) muß die Energie der Momente in diesem Feld (2.34) noch zur Gesamtenergie nach Gleichung (2.13) addiert werden. Insgesamt ergibt sich die Gesamtenergie

$$\begin{aligned}
E(\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}) &= E_0 \\
&- \sum_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \mathbf{B}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \\
&+ \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \sum_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T}) (M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^x + M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^y) \\
&+ \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \sum_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\parallel(\mathbf{T}' - \mathbf{T}) (M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^z - m_{\mathbf{R}}) (M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^z - m_{\mathbf{R}'}) \\
&+ O((\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} - M_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^0 \mathbf{e}_z)^3) \quad . \quad (2.35)
\end{aligned}$$

Minimieren bezüglich der Momente führt auf die Gleichungen

$$B_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x = \sum_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T}) M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^x + O(\Delta \mathbf{M}^2) \quad , \quad (2.36)$$

$$B_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y = \sum_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T}) M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^y + O(\Delta \mathbf{M}^2) \quad \text{und} \quad (2.37)$$

$$B_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^z = \sum_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\parallel(\mathbf{T}' - \mathbf{T}) (M_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^z - m_{\mathbf{R}'}) + O(\Delta \mathbf{M}^2) \quad . \quad (2.38)$$

Offensichtlich ist die Matrix der Kopplungskonstanten gerade invers zur Matrix der Suszeptibilitäten.

### 2.5.3 Diskussion im reziproken Raum

Eine einfachere Form der Gleichungen (2.36,2.37) erhält man, wenn man in den reziproken Raum übergeht. Legt man spiralförmige Magnetfelder an, das heißt

$$\mathbf{B}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = \begin{pmatrix} \text{Re}(B_{\mathbf{R}} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T})) \\ \text{Im}(B_{\mathbf{R}} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T})) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.39)$$

mit frei gewählten komplexen Feldstärken  $B_{\mathbf{R}}$ , so wird als lineare Antwort eine Spinspirale induziert, die sich analog zum Feld in der Form

$$\mathbf{M}_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} = \begin{pmatrix} \text{Re}(M_{\mathbf{R}'} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T}')) \\ \text{Im}(M_{\mathbf{R}'} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T}')) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.40)$$

schreiben läßt. Aus den Gleichungen (2.36,2.37) folgt dann

$$\begin{aligned} B_{\mathbf{R}} &= \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T}) \sum_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\mathbf{T}' - \mathbf{T}) M_{\mathbf{R}'} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T}') \\ &= \sum_{\mathbf{R}'} A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\mathbf{q}) M_{\mathbf{R}'} \quad , \end{aligned} \quad (2.41)$$

wobei wieder die fouriertransformierten Kopplungskonstanten nach Gleichung (2.27) eingeführt wurden.

Da für  $\mathbf{q} \neq 0$  die Matrix  $A^{\perp}(\mathbf{q})$  regulär sein sollte<sup>3</sup>, kann man Gleichung (2.41) invertieren:

$$M_{\mathbf{R}} = \sum_{\mathbf{R}'} \chi_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\mathbf{q}) B_{\mathbf{R}'} \quad (2.42)$$

$$\chi^{\perp}(\mathbf{q}) = (A^{\perp}(\mathbf{q}))^{-1} \quad (2.43)$$

Für  $\mathbf{q} = 0$  hat  $A^{\perp}(\mathbf{q} = 0)$  einen Eigenwert  $\omega(0) = 0$  (vergleiche Kapitel 2.4.3), so daß  $\chi^{\perp}(\mathbf{q} = 0)$  divergiert.

### 2.5.3.1 Spinwellenspektren aus der Suszeptibilität

Damit bietet sich folgendes Verfahren zur Berechnung von Spinwellenspektren an:

1. Man legt an das betrachtete System ein spiralförmiges Magnetfeld der Form (2.39) an, wobei man die Feldstärke  $B_{\mathbf{R}}$  nur eines Untergitters von Null verschieden wählt, und berechnet mit den Methoden der Dichtefunktionaltheorie die induzierten Momente. Wenn das angelegte Feld hinreichend klein gewählt wird, so daß Effekte höherer Ordnung vernachlässigt werden können, kann aus den induzierten Momenten  $M_{\mathbf{R}}$  nach Gleichung (2.42) direkt eine Spalte der Matrix  $\chi^{\perp}(\mathbf{q})$  abgelesen werden.
2. Für ein System mit mehreren Untergittern wiederholt man diesen Schritt für alle inäquivalenten Untergitter. Man erhält so die gesamte Matrix  $\chi^{\perp}(\mathbf{q})$ .
3. Durch Inversion gemäß Gleichung (2.43) erhält man die Matrix der Kopplungskonstanten  $A^{\perp}(\mathbf{q})$  und durch Lösen des Eigenwertproblems (2.28) die Spinwellenfrequenzen.
4. Wiederholt man die Schritte 1–3 für einen repräsentativen Satz von Wellenvektoren  $\{\mathbf{q}\}$  aus dem irreduziblen Teil der ersten Brillouin-Zone, so erhält man das gesamte Spektrum.

Der hier skizzierte Weg wird in Teil III dieser Arbeit besprochen.

<sup>3</sup>Wenn  $A^{\perp}(\mathbf{q})$  für einen kritischen Wellenvektor  $\mathbf{q} = \mathbf{q}_{\text{crit}}$  einen Eigenwert 0 hätte, so könnte sich spontan (ohne Energieaufwand) aus dem ferromagnetischen Grundzustand heraus eine Spinwelle dieses Wellenvektors bilden. Der Grundzustand wäre also instabil oder höchstens metastabil.

## 2.6 Die Energie als Funktion der Richtungen der Momente

### 2.6.1 Taylor-Entwicklung der Energie

Oft möchte man vom Betrag der atomaren Momente absehen und die Energie nur als Funktion ihrer Richtungen ausdrücken:

$$E = E(\{\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}) \quad \text{mit } \mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = \frac{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}}{|\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}|} \quad . \quad (2.44)$$

Prinzipiell kann man den Ausdruck für  $E(\{\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\})$  aus dem für  $E(\{\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\})$  gewinnen, indem man bei gegebenen Richtungen die Energie bezüglich der Beträge der Momente minimiert. Interessiert man sich jedoch nur für den führenden Term einer Taylorentwicklung von  $E(\{\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\})$  um den Grundzustand, so kommt man mit einer einfachen Überlegung schneller zum Ziel:

Direkt am Grundzustand  $\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = \mathbf{e}_z$  gilt per Definition  $|\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}| = M_{\mathbf{R}}^0$ . Variiert man nun eine Momentenrichtung zum Beispiel in  $+x$ -Richtung so führt dies auf einen Zustand, der äquivalent ist zu dem, der sich nach Variation in  $-x$ -Richtung ergäbe. Daher sind die Beträge  $|\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}|$  gerade Funktionen der Variationen  $\Delta\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = \mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} - \mathbf{e}_z$ , ändern sich also nur in zweiter Ordnung:

$$|\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}| = M_{\mathbf{R}}^0 (1 + O(\Delta\mathbf{e}^2)) \quad . \quad (2.45)$$

Bei gegebenen Richtungen  $\{\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}$  kann man daher für die magnetischen Momente den Ansatz

$$\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = |\mathbf{M}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}|\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = M_{\mathbf{R}}^0 (1 + O(\Delta\mathbf{e}^2)) \left( \frac{\begin{matrix} e_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x \\ e_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y \end{matrix}}{\sqrt{1 - (e_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x)^2 - (e_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y)^2}} \right) \quad (2.46)$$

machen. Die  $z$ -Koordinate der Richtung  $\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}$  wurde durch ihre  $x$ - und  $y$ -Koordinate ausgedrückt, um zu verdeutlichen, daß auch sie sich nur in zweiter Ordnung ändert.

Geht man nun mit dem Ansatz (2.46) in den Ausdruck (2.13) für die Gesamtenergie ein, so erhält man

$$\begin{aligned} E(\{\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}\}) &= E_0 \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \sum_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} M_{\mathbf{R}}^0 A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\perp (\mathbf{T}' - \mathbf{T}) M_{\mathbf{R}'}^0 (e_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x e_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^x + e_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y e_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^y) \\ &+ O((\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} - \mathbf{e}_z)^4) \quad . \end{aligned} \quad (2.47)$$

Der Term mit  $A^\parallel$  in Gleichung (2.13) führt hier nur zu Termen vierter Ordnung in  $\Delta\mathbf{e}$ .

Die Drehmomente  $\mathbf{T}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}$  wurden in Gleichung (2.5) durch die Ableitungen der Energie nach den magnetischen Momenten ausgedrückt; ebensogut können die Ableitungen nach

den Momentenrichtungen verwendet werden:

$$\begin{aligned} \mathbf{T}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} &= \frac{dE}{d\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}} \times \mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} \quad \text{mit} \\ \frac{dE}{d\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}} &= \sum_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'} M_{\mathbf{R}}^0 A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{T}' - \mathbf{T}) M_{\mathbf{R}'}^0 \begin{pmatrix} e_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^x \\ e_{\mathbf{R}'+\mathbf{T}'}^y \\ 0 \end{pmatrix} + O(\Delta \mathbf{e}^3) \quad . \end{aligned} \quad (2.48)$$

### 2.6.2 Frozen-Magnon-Rechnungen

Als *Frozen Magnon* bezeichnen wir eine Konfiguration der Momentenrichtungen, die beschrieben wird durch den Ansatz

$$\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} = \begin{pmatrix} \operatorname{Re}(u_{\mathbf{R}} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T})) \\ \operatorname{Im}(u_{\mathbf{R}} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T})) \\ \sqrt{1 - |u_{\mathbf{R}}|^2} \end{pmatrix} , \quad (2.49)$$

wobei die komplexen Amplituden  $\{u_{\mathbf{R}}\}$  noch freie Parameter darstellen. Bei geeigneter Wahl dieser Amplituden erhält man Konfigurationen der Momentenrichtung, die einer Momentaufnahme eines Systems entsprechen, in dem eine einzige Magnonmode angeregt ist.

Berechnet man für die Konfiguration (2.49) die Ableitungen der Energie aus Gleichung (2.48), so erhält man

$$\frac{dE}{d\mathbf{e}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}} = \sum_{\mathbf{R}'} M_{\mathbf{R}}^0 M_{\mathbf{R}'}^0 \begin{pmatrix} \operatorname{Re}(A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{q}) u_{\mathbf{R}'} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T})) \\ \operatorname{Im}(A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{q}) u_{\mathbf{R}'} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T})) \\ 0 \end{pmatrix} + O(u^3) \quad . \quad (2.50)$$

Diese Gleichung läßt sich eleganter formulieren, indem man auch für die Energieableitungen eine komplexe Notation wählt:

$$\left( \frac{dE}{de_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x} \right) + i \left( \frac{dE}{de_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y} \right) = \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{T}) \sum_{\mathbf{R}'} M_{\mathbf{R}}^0 A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^\perp(\mathbf{q}) M_{\mathbf{R}'}^0 u_{\mathbf{R}'} + O(u^3) \quad . \quad (2.51)$$

Über das Kreuzprodukt (2.48) können die kartesischen Koordinaten der Energieableitungen und der Drehmomente miteinander indentifiziert werden:  $T_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x = \frac{dE}{de_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y} + O(u^3)$  und  $T_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^y = -\frac{dE}{de_{\mathbf{R}+\mathbf{T}}^x} + O(u^3)$ .

#### 2.6.2.1 Spinwellenspektren aus Frozen-Magnon-Rechnungen

Damit bietet sich folgendes Verfahren zur Berechnung der Kopplungskonstanten  $A^\perp(\mathbf{q})$  und damit letztlich zur Bestimmung des Spinwellenspektrums an:

1. Man wählt eine Frozen-Magnon-Konfiguration gemäß Gleichung (2.49), bei der nur die Richtungen eines Untergitters verkippt sind, das heißt für die nur einer der Parameter  $\{u_{\mathbf{R}'}\}$  von Null verschieden ist. In Gleichung (2.49) sind nur die relativen Phasen der komplexen Amplituden  $u_{\mathbf{R}}$  relevant. Man kann daher, wenn nur eine Amplitude von Null verschieden ist, diese ohne weiteres reell wählen. An diese Konvention werde ich mich im folgenden halten.

Für diese Konfiguration berechnet man alle resultierenden Drehmomente  $N_{\mathbf{R}}$ . Gemäß Gleichung (2.51) ist dann der Ausdruck  $\frac{1}{u_{\mathbf{R}'}} \left( \frac{dE}{d\mathbf{e}_{\mathbf{R}}} \right)$  ein Maß für das Matrixelement  $A_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}^{\perp}(\mathbf{q})$ . Man erhält also mit einer Rechnung eine Spalte der Matrix  $A^{\perp}(\mathbf{q})$ .

2. Für ein System mit mehreren Untergittern wiederholt man diese Rechnung und prägt nacheinander jedem Untergitter ein Frozen-Magnon auf. Damit erhält man sukzessive alle Spalten der Matrix  $A^{\perp}(\mathbf{q})$ .
3. Durch Lösen des Eigenwertproblems (2.28) ergeben sich daraus die Spinwellenfrequenzen.
4. Wiederholt man die Schritte 1–3 für einen repräsentativen Satz von Wellenvektoren  $\{\mathbf{q}\}$  aus dem irreduziblen Teil der ersten Brillouin-Zone, so erhält man das gesamte Spektrum.

Der hier skizzierte Weg wird in Teil II dieser Arbeit besprochen.

### 2.6.3 Zusammenhang mit den Frozen-Magnon-Rechnungen von Halilov et al.

Eine Variante des geschilderten Verfahrens haben Halilov, Eschrig und Mitarbeiter [11, 12] benutzt, um Spinwellenspektren zu berechnen. Sie berechnen Gesamtenergien für einen Satz von Frozen-Magnon-Konfigurationen.

Geeignete Energiedifferenzen sind dann jeweils ein Maß für die Kopplungskonstanten. Um alle nötigen Konstanten berechnen zu können, müssen dabei auch Konfigurationen betrachtet werden, bei denen zwei Untergittern gleichzeitig ein Frozen-Magnon aufgeprägt ist. Da für ein System mit  $N_A$  inäquivalenten Atomen in der Basis in der Matrix der Kopplungskonstanten  $N_A^2$  unabhängige reelle Zahlen zu bestimmen sind, müssen insgesamt auch für  $N_A^2$  Konfigurationen Gesamtenergierechnungen durchgeführt werden. Im Gegensatz dazu liefert der Weg über die Drehmomente je Rechnung eine ganze Spalte, so daß unser Verfahren mit  $N_A$  Rechnungen auskommt.

Im Grenzfall  $N_A = 1$  sind beide Verfahren gleichwertig.

## 2.7 Einige im Modell vernachlässigte Effekte

Im Hauptteil dieses Kapitels wurde ein sehr einfaches Modell zur Beschreibung von Spinwellen vorgestellt. Seine Kernbestandteile waren zum einen die Beschränkung auf nur einen

Freiheitsgrad pro Atom und die harmonische Näherung für die dazugehörige Energie. Aufgrund dieser Beschränkungen können eine ganze Reihe von Eigenschaften realer Spinwellen nicht beschrieben werden; diese sollen hier wenigstens kurz erwähnt werden:

- Im Inneren einer ferromagnetischen Probe liegt stets ein effektives Magnetfeld  $B_{\text{eff}}$  parallel zur Magnetisierungsrichtung vor, das die Summe einerseits des Anisotropiefeld und zum anderen der Streufelder aller Atome des Ferromagneten ist. Die Anregung einer einzelnen Spinwelle reduziert unabhängig von ihrem Wellenvektor  $\mathbf{q}$  die Gesamtmagnetisierung der Probe um das magnetische Moment  $2\mu_{\text{B}}$  eines Elektrons und erfordert daher auch im Grenzfall  $\mathbf{q} \rightarrow 0$  die Energie  $2\mu_{\text{B}}B_{\text{eff}}$ . Insgesamt hat  $B_{\text{eff}}$  daher die Wirkung, das gesamte Spektrum ein wenig nach oben zu verschieben.

Da im geschilderten Modell weder die Spin-Bahn-Kopplung (als Ursache des Anisotropiefeldes) noch Streufeldefekte berücksichtigt wurden, fehlt  $B_{\text{eff}}$  in unseren Rechnungen.

- Die Beschränkung auf den harmonischen Anteil der Energie führt auf lineare Bewegungsgleichungen, so daß die Eigenmoden entkoppeln und mit stabilen Anregungen, eben den Spinwellen, identifiziert werden können. Würde man Terme höherer Ordnung in der Energie zulassen, so könnte man dennoch im Bild von Spinwellen als (näherungsweise) Eigenmoden bleiben, müßte es jedoch um Wechselwirkungen zwischen den Spinwellen erweitern.
- Mit der Beschränkung auf einen Freiheitsgrad pro Atom haben wir zugleich die adiabatische Näherung gemacht; das heißt wir haben unterstellt, daß sich das Elektronensystem immer im energetisch tiefsten, mit der jeweiligen Momentenrichtung verträglichen Zustand befindet. In realen Systemen wird der Freiheitsgrad der Momentenbewegung jedoch an die inneren Freiheitsgrade des Elektronensystems gekoppelt sein, so daß die Energie der Spinwelle in das Elektronensystem dissipiert werden kann. Dies führt zu einer endlichen Lebensdauer der Spinwelle und damit verknüpft zu einer endlichen Linienbreite im Spinwellenspektrum. Die adiabatische Näherung wird insbesondere dann zusammenbrechen, wenn es Ein-Elektronen-Anregungen vergleichbarer Energie und Wellenzahl gibt; das heißt dann, wenn die Spinwellenlinie in das Stoner-Kontinuum einmündet.



# Kapitel 3

## Grundzüge der Dichtefunktionaltheorie

Die Grundzüge der Dichtefunktionaltheorie wurden bereits mehrfach dargestellt; ausführliche Übersichtsartikel sind beispielsweise [15] oder [16] für den kollearen Fall sowie [17] für den spinverkippten Fall. Die folgende Darstellung erhebt daher nicht den Anspruch, alle Aspekte der Dichtefunktionaltheorie in gleicher Ausführlichkeit zu diskutieren, vielmehr konzentriere ich mich auf diejenigen Aspekte, die für diese Arbeit von besonderer Wichtigkeit sind.

Unterschiede zwischen der folgenden und üblicheren Darstellungen liegen unter anderem in der Diskussion der lokalen Spindichtenäherung im Zusammenhang mit spinverkippten Systemen. Die hier gewählte Notation weicht von der üblichen ab und hilft, die späteren Teile der Arbeit vorzubereiten.

### 3.1 Überblick

Ziel der Dichtefunktionaltheorie ist es, die Grundzustandseigenschaften eines Systems aus  $N$  ununterscheidbaren wechselwirkenden Teilchen zu bestimmen. Im Rahmen dieser Arbeit ist nur die Anwendung der Dichtefunktionaltheorie auf ein Elektronensystem relevant; in dieser Ausprägung wird die Dichtefunktionaltheorie auch oft als ab-initio-Elektronentheorie bezeichnet.

Als Kernbestandteile der Theorie müssen angesprochen werden:

1. Die *Theoreme von Hohenberg und Kohn* [18] zeigen, daß die Teilchendichte  $n(\mathbf{r})$  als zentrale Variable eingeführt werden kann. Die Gesamtenergie wird als Funktional der Teilchendichte geschrieben; die Grundzustandsdichte minimiert dieses Funktional. Dies stellt eine bedeutende Vereinfachung gegenüber dem Ritzschen Variationsprinzip dar, bei dem die Energie als Funktional der Vielteilchenwellenfunktion  $\Psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N)$  ausgedrückt werden muß.
2. Kohn und Sham [19] zeigten, daß das System aus  $N$  wechselwirkenden Elektro-

nen abgebildet werden kann auf ein System aus  $N$  fiktiven wechselwirkungsfreien Teilchen, die sich in einem geeignet konstruierten effektiven Potential bewegen und die die gleiche Grundzustandsdichte haben. Der Grundzustand ergibt sich dann als selbstkonsistente Lösung eines Satzes von miteinander gekoppelten Gleichungen, der sogenannten *Kohn-Sham-Gleichungen*. Ihr Herzstück ist eine effektive Einteilchen-Schrödinger-Gleichung für die Bewegung der wechselwirkungsfreien Teilchen im effektiven Potential.

3. Eine zentrale Rolle bei dieser Abbildung spielt das *Austausch-Korrelations-Energiefunktional*, das unter anderem die Aufgabe hat, die Vielteilcheneffekte der Korrelation und des quantenmechanischen Austausches richtig zu beschreiben. Die genaue Form dieses Funktionals ist jedoch nicht bekannt, so daß hier Näherungsansätze benutzt werden müssen. Ein einfacher Ansatz, der bereits in den ursprünglichen Arbeiten von Hohenberg, Kohn und Sham vorgeschlagen wurde, ist die *lokale Dichtenäherung*.

In den etwa dreieinhalb Jahrzehnten seit ihrer Entstehung wurde die Dichtefunktionaltheorie in vielerlei Hinsicht verallgemeinert und verbessert. Einige im Kontext der vorliegenden Arbeit besonders wichtige Stationen dieser Entwicklung sind:

- Bereits 1972 gelang von Barth und Hedin die Verallgemeinerung der Dichtefunktionaltheorie für spinpolarisierte Systeme [20]. An die Stelle der einen Teilchendichte  $n(\mathbf{r})$  als zentrale Größe der Theorie tritt das Paar  $(n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r}))$  der Spin-Auf- und Spin-Ab-Dichten.

Bereits in dieser Arbeit enthalten ist auch die Verallgemeinerung auf den spinverkippten Fall, bei dem die Elektronenspins nicht nur parallel oder antiparallel zu einer Vorzugsrichtung stehen, sondern in beliebige Raumrichtungen zeigen können. In diesem Fall muß die Teilchendichte ersetzt werden durch die *Spindichtematrix*  $\rho(\mathbf{r})$ .

- Mel Levy [21] zeigte 1979 eine alternative Herleitung der Theoreme von Hohenberg und Kohn. Sie ist mathematisch eleganter und kommt mit schwächeren Voraussetzungen aus als die ursprüngliche Formulierung von Hohenberg und Kohn.
- Während gewöhnlich einfach nach der Grundzustandsdichte gefragt wird, also nach derjenigen Teilchendichte, die die minimale Energie liefert, kann man die Suche auch auf solche Dichten einschränken, die gewisse Nebenbedingungen erfüllen. Dederichs, Blügel, Zeller und Akai [22] konnten zeigen, daß auch für diese modifizierte Fragestellung die Dichtefunktionaltheorie anwendbar bleibt. Dabei müssen die Nebenbedingungen über Lagrange-Multiplikatoren an das Energiefunktional angekoppelt werden.
- Seit Ende der Achtziger-Jahre wird die Dichtefunktionaltheorie auch auf spinverkippte Systeme angewandt, wobei im Sinne der Arbeit von von Barth und Hedin [20] die Spindichtematrix die zentrale Größe der Theorie ist. Seit der ersten selbstkonsistente Rechnung für ein spinverkipptes System von Kübler und Mitarbeitern [23] wurden

zahlreiche Arbeiten auf diesem Feld veröffentlicht. Einen aktuellen Überblick gibt der Übersichtsartikel von Sandratskii [17].

## 3.2 Die Theoreme von Hohenberg und Kohn

### 3.2.1 Problemstellung

Gesucht ist der Grundzustand eines Systems aus  $N$  nichtrelativistischen Elektronen. Sie werden charakterisiert durch den Operator

$$\hat{T} = \sum_i \hat{T}_i \quad \text{mit} \quad \hat{T}_i = -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_i \quad (3.1)$$

der kinetischen Energie und den Operator

$$\hat{U} = \frac{1}{2} \sum_{ij} \hat{U}_{ij} \quad \text{mit} \quad \hat{U}_{ij} = \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \quad (3.2)$$

der Wechselwirkungsenergie.

Die genaue Form des Wechselwirkungsoperators  $\hat{U}_{ij}$  in Gleichung (3.2) geht in diesem Abschnitt nicht in die Diskussion ein. Wir hätten uns daher nicht auf Elektronen festlegen müssen, sondern können zunächst allgemeiner nach dem Grundzustand von  $N$  identischen Teilchen fragen.

Bei gegebener Potentialmatrix  $W(\mathbf{r})$  lautet der Hamilton-Operator des Vielteilchensystems

$$\hat{H} = \sum_i \hat{T}_i + \frac{1}{2} \sum_{ij} \hat{U}_{ij} + \sum_i W(\mathbf{r}_i) \quad . \quad (3.3)$$

Der Grundzustand ist durch diejenige Vielteilchenwellenfunktion  $|\Psi_0\rangle$  gekennzeichnet, die  $E[\Psi] = \langle \Psi | \hat{H} | \Psi \rangle$  minimiert, wobei im Fall der fermionischen Elektronen die Suche auf total antisymmetrische Vielteilchenwellenfunktionen zu beschränken ist.

Die Theoreme von Hohenberg und Kohn [18] zeigen, daß sich dieses Problem abbilden läßt auf die Aufgabe, ein Energiefunktional der Teilchendichte  $n(\mathbf{r})$  zu minimieren. Die folgende Darstellung der Theoreme von Hohenberg und Kohn ist gegenüber [18] in zweierlei Hinsicht verallgemeinert:

- Ich folge der etwas allgemeineren und eleganteren Darstellung von Levy [21].
- Die Darstellung ist verallgemeinert auf den spinpolarisierten und spinverkippten Fall. Dabei nimmt anstelle der Teilchendichte  $n(\mathbf{r})$  des unpolarisierten Falls die Spindichtematrix  $\rho(\mathbf{r})$  die zentrale Rolle ein.

### 3.2.2 Einschub: Die Spindichtematrix

Da die Spindichtematrix  $\rho(\mathbf{r})$  die zentrale Variable der folgenden Kapitel wird, soll in diesem Abschnitt ihre Definition und Bedeutung rekapituliert werden.

### 3.2.2.1 Definition und physikalische Interpretation

Wir betrachten ein Modellsystem aus  $N$  wechselwirkungsfreien Teilchen, die sich in Zuständen  $\psi_i(\mathbf{r}) = \begin{pmatrix} \psi_{i,\uparrow}(\mathbf{r}) \\ \psi_{i,\downarrow}(\mathbf{r}) \end{pmatrix}$  befinden<sup>1</sup>. Für ein solches System ist die Spindichtematrix definiert durch

$$\rho_{\alpha\alpha'}(\mathbf{r}) \stackrel{\text{def}}{=} \sum_{i,\text{occ.}} \psi_{i,\alpha}(\mathbf{r}) \psi_{i,\alpha'}^*(\mathbf{r}) \quad \text{mit } \alpha, \alpha' = \uparrow, \downarrow \quad . \quad (3.4)$$

Die Spindichtematrix ist eine hermitesche  $2 \times 2$ -Matrix.

Eng verwandt ist die *Teilchendichte*. Sie berechnet sich als

$$n(\mathbf{r}) = \sum_{i,\text{occ.}} \sum_{\alpha} |\psi_{i,\alpha}(\mathbf{r})|^2.$$

Durch Vergleich mit Gleichung (3.4) können wir dies umschreiben zu

$$n(\mathbf{r}) = \rho_{\uparrow\uparrow}(\mathbf{r}) + \rho_{\downarrow\downarrow}(\mathbf{r}) \quad . \quad (3.5)$$

Eine andere wichtige Größe ist die *Spindichte*. Man erhält sie, indem man Erwartungswerte mit den Pauli-Matrizen bildet:

$$\mathbf{m}(\mathbf{r}) = \sum_{i,\text{occ.}} \sum_{\alpha\alpha'} \psi_{i,\alpha'}^*(\mathbf{r}) \boldsymbol{\sigma}_{\alpha'\alpha} \psi_{i,\alpha}(\mathbf{r}) \quad , \quad (3.6)$$

wobei  $\boldsymbol{\sigma}$  für den aus den drei Pauli-Matrizen

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (3.7)$$

gebildeten Vektor steht. Eng verwandt mit der Spindichte<sup>2</sup> ist die *Magnetisierung*; sie ist gegeben durch  $-\mu_B \mathbf{m}(\mathbf{r})$ , da beim Elektron Spin und magnetisches Moment antiparallel sind.

Wir können nun den Zusammenhang zwischen den einzelnen Komponenten der Magnetisierung und den Matrixelementen der Spindichtematrix herstellen. Dazu setzen wir die Pauli-Matrizen aus (3.7) in (3.6) ein und vergleichen mit (3.4). Dies führt auf

$$m_x(\mathbf{r}) = +\rho_{\downarrow\uparrow}(\mathbf{r}) + \rho_{\uparrow\downarrow}(\mathbf{r}) = 2 \operatorname{Re}(\rho_{\downarrow\uparrow}(\mathbf{r})) \quad (3.8)$$

$$m_y(\mathbf{r}) = -i\rho_{\downarrow\uparrow}(\mathbf{r}) + i\rho_{\uparrow\downarrow}(\mathbf{r}) = 2 \operatorname{Im}(\rho_{\downarrow\uparrow}(\mathbf{r})) \quad (3.9)$$

$$m_z(\mathbf{r}) = \rho_{\uparrow\uparrow}(\mathbf{r}) - \rho_{\downarrow\downarrow}(\mathbf{r}) \quad (3.10)$$

<sup>1</sup>Strenggenommen müßte das System wechselwirkender Teilchen durch eine Vielelektronenwellenfunktion  $\Psi(\mathbf{r}_1, \alpha_1, \dots, \mathbf{r}_N, \alpha_N)$  beschrieben werden. Die Notation würde dadurch unübersichtlich, ohne daß die Ergebnisse verändert würden.

<sup>2</sup>Strenggenommen hat nur  $\frac{\hbar}{2} \mathbf{m}(\mathbf{r})$  die Dimension und die Bedeutung einer Drehimpulsdichte; die Wahl „Spindichte“ für  $\mathbf{m}(\mathbf{r})$  ist also etwas ungenau.