

UNIVERZA V LJUBLJANI

FAKULTETA ZA MATEMATIKO IN FIZIKO

MAGISTRSKI ŠTUDIJSKI PROGRAM 2. STOPNJE, FIZIKA

Boštjan Jenčič

# **Transportni pojavi v neurejenih Heisenbergovih spinskih verigah**

**Magistrsko delo**

Mentor: prof. dr. Peter Prelovšek

Ljubljana, September 2014



**Izjava o avtorstvu in objavi elektronske oblike zaključnega dela:**

Podpisani *Boštjan Jenčič* izjavljam;

-da sem magistrsko delo z naslovom *Transportni pojavi v neurejenih Heisenbergovih spinских веригах* izdelal samostojno pod mentorstvom prof. dr. Petra Prelovška.

-da Fakulteti za matematiko in fiziko Univerze v Ljubljani dovoljujem objavo elektronske oblike svojega dela na spletnih straneh.

Ljubljana, 28.8.2014

Podpis; . . . . . . . . . . .



## **Zahvala**

Zahvaljujem se svojemu mentorju, prof. dr. Petru Prelovšku, za številna mnenja, dobre nasvete in nove ideje, zaradi katerih mi je bilo opravljanje raziskovalnega dela mnogo lažje. Prav tako bi se mu rad zahvalil za potrpljenje pri začetnem umirjenem tempu, ter predanost v zaključnem finišu.

Zahvala gre tudi kolegom, ki so mi tekom študija mnogokrat nesebično pomagali, ter družini in priateljem, ki so mi stali ob strani.



## Izvleček

V magistrski nalogi sem preučil temperaturno odvisnost toplotne in spinske prevodnosti v klasičnem Heisenbergovem antiferomagnetnem modelu z naključnimi, enakomerno porazdeljenimi sklopitvami. Simulacije so bile opravljene z Langevinovo metodo, prevodnosti pa izračunane po Green-Kubo formuli, ki temelji na računanju korelacijskih funkcij spinskega in toplotnega toka.

V delu so bili raziskani modeli z različnimi velikostmi nereda sklopitvene konstante. Izkaže se, da sistemi z višjimi vrednostmi nereda pri nizkih temperaturah ne prevajajo toplotne, kar je drugače kot pri urejenem klasičnem modelu, kjer toplotna prevodnost pri temperaturi nič divergira. Opaziti je mogoče tudi pomembno razliko med klasičnim modelom in kvantnim modelom s spinom  $1/2$  brez nereda, kjer je teoretično predviden balistični prenos toplotne.

Z linearizacijo gibalnih enačb sem preveril tudi obnašanje magnetnih vzbuditev pri nizkih temperaturah. V primeru urejenega antiferomagneta z redom dolgega dosega, so osnovne vzbuditve v antiferomagnetu t.i. magnoni, ki imajo obliko ravnih valov, ter so tako prostorsko neomejeni. Z dodanim neredom pa osnovne vzbuditve v enodimenzionalni verigi postanejo lokalizirane, kar ima pomemben vpliv na transportne pojave. Z metodo povprečevanja po naključno usmerjenih spinih sem preučil tudi prevodnosti pri visokih temperaturah, ter vrednosti in korelacijske funkcije primerjal z numeričnimi izračuni po Langevinovi metodi.

**Ključne besede:** Antiferomagnetizem, lokalizacija, spinski valovi, toplotna prevodnost, neurejeni sistemi, klasični spinski modeli, spinske verige

**PACS:** 75.50.Ee, 71.23.An, 75.30.Ds, 75.40.Gb, 71.55.Jv, 75.10.Hk, 75.10.Pq



## Abstract

The master thesis deals with temperature dependence of spin- and thermal conductivity in classical Heisenberg antiferromagnetic model with random uniformly distributed exchange couplings. Simulations were performed with Langevin method, and conductivities were calculated through correlation function dependent Green-Kubo formula.

Several models with different disorder strength were studied in the thesis. The thermal conductivity in models with higher disorder vanishes at low temperatures, which is different than in the case of ordered Heisenberg model, where heat conductivity diverges as the temperature goes to zero. One of the main differences between classical and quantum ordered Heisenberg model with spin 1/2 is the absence of ballistic heat transport in the classical model.

The behaviour of magnetic excitations at low temperatures was also studied through linearization of equations of motion. The basic excitations of ordered antiferromagnetic model with long range order, magnons, are replaced by localized states in disordered spin chain model, which significantly influences the transport properties of the chain. With averaging over randomly directed spins, I also examined the conductivities at high temperatures and compared their values and correlation functions to numerical results obtained by the Langevin method.

**Keywords** Antiferromagnetism, localization, spin waves, heat conductivity, disordered systems, classical spin models, spin chains

**PACS:** 75.50.Ee, 71.23.An, 75.30.Ds, 75.40.Gb, 71.55.Jv, 75.10.Hk, 75.10.Pq



# Kazalo

<b>1</b>	<b>Uvod</b>	<b>13</b>
<b>2</b>	<b>Teoretične osnove</b>	<b>15</b>
<b>2.1</b>	<b>Magnetno urejene snovi</b>	<b>15</b>
<b>2.1.1</b>	<b>Izmenjalne interakcije</b>	<b>15</b>
<b>2.1.2</b>	<b>Heisenbergov hamiltonian</b>	<b>17</b>
<b>2.1.3</b>	<b>Nizkotemperaturne lastnosti spinskih verig</b>	<b>18</b>
<b>2.2</b>	<b>Transportni pojavi</b>	<b>20</b>
<b>2.2.1</b>	<b>Kinetična teorija</b>	<b>20</b>
<b>2.2.2</b>	<b>Green-Kubo formula</b>	<b>22</b>
<b>3</b>	<b>Eksperimentalni rezultati</b>	<b>26</b>
<b>3.1</b>	<b>Primeri spinskih verig</b>	<b>26</b>
<b>3.2</b>	<b>Toplotna prevodnost kristalov <math>Sr_2CuO_3</math> in <math>SrCuO_2</math></b>	<b>27</b>
<b>3.3</b>	<b>Spinske verige z višjim spinom</b>	<b>29</b>
<b>4</b>	<b>Transport v neurejenih spinskih verigah</b>	<b>30</b>
<b>4.1</b>	<b>Model</b>	<b>30</b>
<b>4.1.1</b>	<b>Dinamične enačbe Heisenbergovega modela</b>	<b>30</b>
<b>4.1.2</b>	<b>Definicija spinskega in toplotnega toka v Heisenbergovem modelu</b>	<b>32</b>
<b>4.2</b>	<b>Metoda računanja prevodnosti</b>	<b>33</b>
<b>4.3</b>	<b>Linearizacija enačb gibanja</b>	<b>36</b>
<b>4.4</b>	<b>Toplotna in spinska prevodnost neurejenih sistemov</b>	<b>41</b>
<b>4.4.1</b>	<b>Korelacijske funkcije toplotnega toka</b>	<b>41</b>
<b>4.4.2</b>	<b>Temperaturna odvisnost toplotne prevodnosti in povprečna prosta pot</b>	<b>43</b>
<b>4.4.3</b>	<b>Spinska prevodnost</b>	<b>46</b>
<b>4.5</b>	<b>Antiferomagnetna veriga v izmenjujočem polju</b>	<b>48</b>
<b>4.6</b>	<b>Limita visokih temperatur</b>	<b>49</b>
<b>5</b>	<b>Zaključek</b>	<b>53</b>



# 1 Uvod

Spinske verige predstavljajo enodimensionalne magnetne sisteme, ki jih opisuje Heisenbergov hamiltonian, in zasedajo pomembno področje v raziskovanju nizkodimensionalnih fizikalnih modelov. Teoretično osnovo je leta 1931 z analitično rešitvijo Heisenbergove antiferomagnetne verige s spinom  $1/2$  ( $S = 1/2$ ) postavil Bethe (Bethe Ansatz) [1]. Odtlej so bile fizikalne lastnosti enodimensionalnih magnetnih sistemov poglobljeno preučevane, predvsem zaradi številnih nepričakovanih in eksotičnih osnovnih ter vzbujenih stanj v kvantnih sistemih, kjer ima nizka dimenzionalnost posebno močan vpliv.

Eno bolj zanimivih tem nizkodimensionalnega magnetizma predstavlja vprašanje transportnih pojavov. Prenos energije v nekaterih sistemih, kot naprimer v  $S = 1/2$  antiferomagnetni verigi, je teoretično predviden balističen na vsej temperaturni skali, saj operator energijskega toka komutira s hamiltonianom, kar vodi do divergence toplotne prevodnosti. Po drugi strani pa številni eksperimenti [2,3,4] na realizacijah antiferomagnetnih spinskih verig (predvsem kupratih) kažejo končno toplotno prevodnost in difuziven transport kvazidelcev, kar je posledica interakcij med magnetnimi vzbuditvami, in nečistočami ali drugimi kvazidelci, denimo fononi. Tovrstne interakcije vodijo tudi do neintegrabilnosti modela. Kljub temu pa je tudi v resničnih kristalih delež magnetne toplotne prevodnosti, ki je posledica prenosa vzbuditev, precej velik in vsaj primerljiv, lahko pa tudi precej večji od deleža fononov, kar podpira teoretične izračune. Balistični način transportnih pojavov je bil pri nizkih temperaturah že eksperimentalno potrjen [5]. Vpliv sisanja magnetnih vzbuditev na fononih in nečistočah je bil prav tako, kljub neintegrabilnosti sistema, teoretično raziskan [6].

Pojav nečistoč, praznin ali dislokacij v vseh realnih kristalih vodi do nereda v sistemih, ki jih sicer obravnavamo kot popolnoma urejene. Močan nered v številnih nizkodimensionalnih sistemih, tako klasičnih kot kvantnih, vodi do pojava lokalizacije kvantnih stanj, oziroma klasičnih rešitev [7]. Lokalizacija se pojavlja pri nizkih temperaturah in je opazna v obliki eksponentnega pojemanja amplitude valovne funkcije lokaliziranega stanja. Vzbuditve, ki zasedajo lokalizirana stanja, so tako omejene na končna območja v prostoru in pri nizkih temperaturah ne morejo prispevati k transportnim pojavom.

V magistrski nalogi obravnavam klasično limito spinskega modela, ki je posebej aktualna za sisteme z višjimi spini (npr.  $S = 5/2$ , ipd.). V realnih materialih so magnetne interakcije sicer kvantnega izvora, vseeno pa Heisenbergov hamiltonian omogoča tudi upravičeno klasično obravnavo, ki ima nekatere prednosti, predvsem možnost preučevanja večjih sistemov. Hkrati pa je mogoče opaziti tudi nekatere pomembne razlike, kjer klasična analogija odpove, zato se je potrebno zavedati omejitev tovrstne obravnave. Glavno vprašanje dela je vpliv dodanega nereda v obliki naključnih velikosti sklopitev med sosednjimi spini na transportne pojave v klasičnem Heisenbergovem modelu, hkrati pa je mogoče preučiti tudi vpliv velikosti nereda na lastnosti sistema. Nered v spinskih verigah je fizikalno najpogosteje posledica nečistoč v sicer idealnih kristalnih strukturah. Dober primer so kupratni kristali  $BaCu_2(Si_{1-x}Ge_x)O_7$ ,  $(Sr_{1-x}Ca_x)_2CuO_3$  in  $(Sr_{1-x}Ca_x)CuO_2$ , [8], kjer dopiranje z germanijem in kalcijem vodi do nereda pri sklopitvah spinov. Teoretične izračune je tako mogoče primerjati tudi z eksperimentalnimi rezultati pri nekaterih realizacijah spinskih verig, predvsem pri zgoraj omenjenih kupratih.

V prvem poglavju z linearizacijo enačb gibanja preverim vpliv dodanega nereda na magnetne vzbuditve pri nizkih temperaturah. V urejenem sistemu je pri lineariziranih enačbah mogoče pričakovati balistične transportne pojave, saj so v Heisenbergovem modelu ravno nelinearni členi vzrok za sipalne pojave in difuzivni transport. Pravilnost diagonalizacije matrike, ki opisuje dinamiko spinov, preverim najprej v urejenem sistemu, ki je sicer tudi analitično rešljiv, nato pa se osredotočim na lokalizirana stanja, ki se pojavljajo v neurejenih modelih, ter preučevanje njihovih lastnosti.

V drugem sklopu numerično izračunam odvisnosti toplotne in spinske prevodnosti od temperature, ter njuno obnašanje pri nizkih temperaturah, kjer je pričakovati največji vpliv neurejenih sklopitev. Toplotna prevodnost urejenega klasičnega antiferomagneta je bila že obravnavana [9] in se je izkazala za končno za vse  $T > 0$ . Prav tako je bil teoretično raziskan tudi model, ki je vključeval diagonalni nered, torej naključna lokalna polja, pri visokih temperaturah [10]. Numerični rezultati za model z naključnimi skloptvami med sosednjimi ioni se od obeh primerov precej razlikujejo. Dobljene rezultate in njihovo smiselnost nato poskušam razložiti s pomočjo preprostega Drudejevega modela, ki je, vsaj v grobem, v pomoč pri interpretaciji rezultatov. Preučim tudi vpliv zunanjega, izmenjujočega, polja na transportne pojave v verigi. Izmenjujoče polje namreč ohranja vektorje spinov poravnane v bližini  $z$  osi in onemogoča kakšne druge vzbuditve kot tiste, ki sem jih obravnaval v približku linearnih stanj. V limiti visokih temperatur je vse obravnavane količine mogoče izračunati tudi analitično in jih primerjati z numerično pridobljenimi rezultati, ter tako preveriti pravilnost numeričnih metod.

## 2 Teoretične osnove

### 2.1 Magnetno urejene snovi

Nekatere snovi, znane kot feromagneti, imajo lastnost, da je njihov skupni magnetni moment različen od nič tudi ob odsotnosti zunanjega magnetnega polja. Tak pojav se imenuje "spontana magnetizacija". V primeru, da v snovi ne bi bilo magnetnih interakcij, bi bili v odsotnosti zunanjega polja posamezni magnetni momenti termično neurejeni, torej bi kazali v naključne smeri. Slednje bi posledično pomenilo ničelno skupno vsoto magnetnih momentov. Med magnetno urejene snovi spadajo med drugim tudi antiferomagneti. Čeprav je skupna magnetizacija v antiferomagnetu, ob odsotnosti magnetnega polja, enaka nič, se magnetni momenti gradnikov uredijo v urejeno stanje, ki favorizira nasprotne usmeritve sosednjih momentov. V prvem poglavju je na kratko predstavljeno, zakaj in v kakšnih materialih se magnetni momenti ionov uredijo spontano.

#### 2.1.1 Izmenjalne interakcije

Razlog za urejene magnetne strukture se na prvi pogled skriva v dipolni interakciji med magnetnima momentoma dveh ionov. Za magnetna momenta  $\mathbf{m}_1$  in  $\mathbf{m}_2$ , ki ju povezuje vektor  $\mathbf{r}$ , velja zveza za energijo,

$$U = \frac{1}{r^3} [\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{m}_2 - 3(\mathbf{m}_1 \cdot \hat{\mathbf{r}})(\mathbf{m}_2 \cdot \hat{\mathbf{r}})]. \quad (2.1.1)$$

Upoštevajoč, da za velikosti momentov velja  $m_1 \approx m_2 \approx g\mu_B$ , kjer je  $\mu_B = e\hbar/2m_e c$  Bohrov magneton,  $g$  giromagnetno razmerje,  $e$  osnovni naboj,  $\hbar$  Planckova konstanta,  $m_e$  masa elektrona in  $c$  hitrost svetlobe v vakuumu, lahko velikost energije  $U$  ocenimo na

$$U \approx \frac{(g\mu_B)^2}{r^3}. \quad (2.1.2)$$

V magnetnih snoveh se ioni nahajajo na razdaljah približno  $2\text{\AA}$  narazen, kar nakazuje na to, da energija  $U$  ni večja od  $10^{-4}\text{eV} \sim 1\text{K } k_B$ . Energija magnetne dipolne interakcije je tako mnogo premajhna, da bi lahko prispevala k magnetnim ureditvam pri višjih temperaturah, ter se je v večini modelov ne upošteva. Postane pa dipolna interakcija pomembna pri materialih, ki se uredijo pri zelo nizkih temperaturah na mili-Kelvinski skali.

Glavni razlog za magnetno obnašanje snovi se tako skriva v t.i. izmenjalni interakciji [11]. Izmenjalna interakcija je v osnovi posledica elektrostatske interakcije, ki nastane med dvema elektronoma, ki se lahko nahajata bodisi v tripletnem ( $S = 1$ ), bodisi singletnem ( $S = 0$ ) stanju. Ker sta elektrona nabita delca, bo med obema stanjema obstajala velika energijska razlika zaradi Coulombske interakcije.

Izmenjalno interakcijo je mogoče razložiti na preprostem modelu dveh elektronov, katerih skupna valovna funkcija je produkt prostih elektronskih valovnih funkcij  $\psi_a(\mathbf{r}_i)$  in  $\psi_b(\mathbf{r}_j)$ . Kvadrat skupne valovne funkcije mora biti invarianten na zamenjavo elektronov. Ker sta elektrona delca s spinom  $S = 1/2$ , fermiona, morata zadoščati Paulijevemu

izključitvenemu načelu, torej mora biti njuna valovna funkcija antisimetrična. Možnosti sta dve: simetričen prostorski del in antisimetričen spinski del valovne funkcije (singlet), ali antisimetričen prostorski del in simetričen spinski del (triplet),

$$\Psi_S = \frac{1}{\sqrt{2}} (\psi_a(\mathbf{r}_i)\psi_b(\mathbf{r}_j) + \psi_a(\mathbf{r}_j)\psi_b(\mathbf{r}_i)) \chi_S, \quad (2.1.3)$$

$$\Psi_T = \frac{1}{\sqrt{2}} (\psi_a(\mathbf{r}_i)\psi_b(\mathbf{r}_j) - \psi_a(\mathbf{r}_j)\psi_b(\mathbf{r}_i)) \chi_T, \quad (2.1.4)$$

$$\chi_S = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle), \quad S = 0, \quad (2.1.5)$$

$$\chi_T = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) & S^z = 0 \\ |\uparrow\uparrow\rangle & S^z = 1 \\ |\downarrow\downarrow\rangle & S^z = -1 \end{cases}. \quad (2.1.6)$$

Ker vsak spinski operator posameznega elektrona ustreza zvezi:  $\mathbf{S}_i^2 = S(S+1) = 3/4$ , za skupni spin obeh elektronov velja,

$$\mathbf{S}^2 = S(S+1) = (\mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2)^2 = \frac{3}{2} + 2\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2. \quad (2.1.7)$$

Operator  $\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$  ima lastno vrednost  $-3/4$  v primeru singletnega  $S = 0$  stanja, ter  $1/4$  za vsa tri tripletna  $S = 1$  stanja. Posledično ima operator,

$$H^{spin} = \frac{1}{4}(E_s + 3E_t) - (E_s - E_t)\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2 \quad (2.1.8)$$

lastno vrednost  $E_s$  za singlet in  $E_t$  za katerokoli tripletno stanje, ter predstavlja spinski del hamiltoniana. S premikom energijske skale in neupoštevanjem konstantnega člena je spinski hamiltonian končne oblike,

$$H = J\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2, \quad J = (E_t - E_s). \quad (2.1.9)$$

Izraz "izmenjalna interakcija" je posledica dejstva, da konstanta  $J_{ij}$  izmenjuje spina  $i$  in  $j$ , kar omogoča sistemu nižanje energije, ki je odvisna od relativne orientacije spinov dveh elektronov. V primeru  $J_{ij} < 0$  je interakcija feromagnetna in favorizira enako usmeritev spinov, za  $J_{ij} > 0$  pa se bo sistem uredil antiferomagnetno (nasprotna usmeritev spinov).

Rezultat za  $N = 2$  elektrona je mogoče dobiti iz že znanih rezultatov, kar pa ne velja za večje  $N$ . Vseeno pa se izkaže, da je za večino primerov spinski hamiltonian kar vsota spinskih hamiltonianov za dvo-spinski sistem, seštet po vseh parih ionov,

$$H^{spin} = \sum_{i,j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j. \quad (2.1.10)$$

Da je tak, t.i. Heisenbergov hamiltonian, upravičen, mora veljati, da so vsi magnetni ioni dovolj daleč narazen, da je prekrivanje njihovih orbital (elektronskih valovnih

funkcij) majhno. Poleg tega je lahko v primeru, ko skupna vrtilna količina ionov vsebuje tako tirni kot tudi spinski del, hamiltonian odvisen tako od absolutnih kot tudi relativnih spinskih orientacij, kar se odraža v anizotropiji sistema.

Zgoraj opisana interakcija je t.i. direktna izmenjalna interakcija, saj predstavlja sklopitev dveh sosednjih ionov. V naravi se pogosto dogodi, da je med dvema magnetnima ionoma nemagnetni ion, kar vodi do posredne interakcije ali ‐superizmenjalne interakcije‐.

### 2.1.2 Heisenbergov hamiltonian

Čeprav so magnetni sistemi v naravi striktno gledano trodimenzionalni (3D), jih nekatere lahko obravnavamo kot nižje dimenzionalne modele zaradi različnih moči izmenjalnih interakcij v različnih smereh. Pogosto je mogoče opaziti realizirane spinske verige (1D), spinske lestve, ki predstavljajo  $M$  sklopljenih spinskih verig, ali pa planarne (2D) magnetne sisteme. Prav tako se pogosto lahko upošteva zgolj izmenjalne interakcije med najbližnjimi sosedji, saj vrednost izmenjalnega integrala z razdaljo med ioni eksponentno pojema. V primeru, da so izmenjalni integrali med vsakim parom sosednjih ionov enaki, je Heisenbergov model mogoče splošno zapisati kot vsoto po najbližjih sosedih,

$$H = \sum_{\langle i,j \rangle}^N [J_x S_i^x S_j^x + J_y S_i^y S_j^y + J_z S_i^z S_j^z]. \quad (2.1.11)$$

Komponente  $S^{x,y,z}$  predstavljajo spinske operatorje dimenzijskega  $(2S+1)$ . V primeru sistema s spinom  $S = 1/2$  vektor spina sestoji iz Paulijevih matrik,

$$\begin{aligned} S^x &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \\ S^y &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \\ S^z &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (2.1.12)$$

Zgoraj opisan Heisenbergov model opisuje v splošnem anizotropni primer. Pogosto je namreč sisteme zaradi anizotropije, ki je posledica tirne vrtilne količine elektrona, mogoče opisati z manj relavantnimi komponentami spinskega vektorja. V primeru, da velja  $J_z \gg J_x, J_y$  (Isingov model), ima sistem zgolj eno upoštevano komponento spina,  $S^z$ . Model, kjer sta upoštevani zgolj dve komponenti predstavlja t.i. XY model, za katerega velja  $J_z = 0$  in  $J_x, J_y \neq 0$ . Za sisteme, kjer v poštvetu pridejo vse tri komponente spina, pa sta najbolj pogosta izotropni model  $J_x = J_y = J_z = J$  in anizotropni XXZ model  $J_x = J_y = J$ ,  $J_z/J = \Delta$ , katerih limiti sta XY model ( $\Delta \rightarrow 0$ ) in Isingov model ( $\Delta \gg 1$ ).

V primeru zunanjega magnetnega polja, se v hamiltonianu pojavi tudi dodatni člen,

$$H_B = -g\mu_B \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{B}_i, \quad (2.1.13)$$

kjer  $\mathbf{B}_i$  predstavlja gostoto magnetnega polja na mestu  $i$ .

Lastnosti sistema močno zavisijo tudi od dimenzijs kristalne mreže. Trodimenzionalen magnetni sistem se magnetno uredi pri temperaturi Neelovega prehoda  $T_c > 0$ , medtem ko 1D magnetni sistemi ne kažejo ureditve dolgega doseganja zaradi efekta fluktacij. Izjema je Isingov model, ki se uredi pri  $T_c = 0$  [12].

### 2.1.3 Nizkotemperaturne lastnosti spinskih verig

V primeru enodimenzionalnega, izotropnega Heisenbergovega modela (spinska veriga) s spinom  $S = 1/2$  obravnavamo model, ki ga opisuje hamiltonian,

$$H = J \sum_{i=1}^N \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+1} - g\mu_B \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{B}_i. \quad (2.1.14)$$

Za osnovno stanje feromagneta brez zunanjega magnetnega polja bo veljalo:  $\psi_0^{FM} = |\uparrow\uparrow\dots\uparrow\rangle$ , energija pa bo posledično  $E_0 = -NJ/4$  in skupna vrednost  $z$  komponente spina  $S_z^{tot} = N/2$ . Feromagnetno osnovno stanje je enako tako v kvantnem, kot tudi klasičnem modelu.

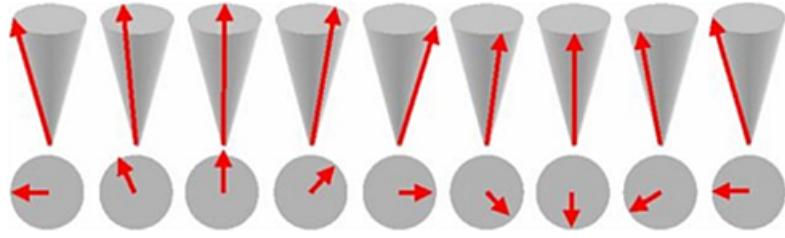
Pričakovano osnovno stanje antiferomagnetne spinske verige bi bilo tako  $\psi_0^{AFM} = |\uparrow\downarrow\uparrow\dots\downarrow\uparrow\rangle$ , kar bi pomenilo skupno vrednost  $S_z^{tot} = 0$ . Slednje, t.i. Neelovo stanje, je osnovno stanje zgolj v klasičnem modelu, medtem ko  $\psi_0^{AFM}$  ni lastno stanje hamiltoniana  $H$  v kvantnem primeru (denimo  $S = 1/2$ ), kjer so komponente spina Paulijeve matrike. S pomočjo nastavka Betheja je za primer antiferomagnetne spinske verige mogoče dobiti točno rešitev za osnovno stanje, njegova energija pa je nižja od energije Neelovega stanja,  $E_0 = -N|J|[ln2 - 1/4] = -0.44|J|N$ .

Kvantni (in tudi klasični) izotropni spinski modeli dovoljujejo tudi vzbujena stanja oziroma dinamične rešitve. Takšna vzbujena stanja se pojavljajo v obliki spinskih valov oz. kvantnih ekscitacij-magnonov. Najmanjša vzbuditev iz feromagnetnega osnovnega stanja pomeni en spin obrnjen nasproti ostalim, kar poveča energijo za  $\Delta E = J/2$ , skupen spin pa se zmanjša za  $S = 1$ . Elementarne vzbuditve, magnoni, so tako vzbuditve s spinom  $S = 1$  in so bozoni. S transformacijo Holsteina in Primakoffa, ki preslikava spinske operatorje  $\mathbf{S}$  v bozonske kreacijske operatorje  $a^\dagger$  in anihilacijske operatorje  $a$ , je moč spinski hamiltonian skozi linearizacijo prevesti na hamiltonian nesklopljenih harmoničnih oscilatorjev. Magnonske vzbuditve si je tako mogoče predstavljati kot propagirajoča valovanja (slika 1), podobno kot fononska nihanja v mrežnih rešetkah. Disperzijska zveza za magnone v feromagnetu je,

$$\hbar\omega = 2|J|S(1 - \cos(ka)), \quad (2.1.15)$$

kjer  $a$  predstavlja razdaljo med delcema na mreži. Magnonska disperzijska zveza v antiferomagnetu se od feromagnetnega primera razlikuje in sicer velja,

$$\hbar\omega = 2|J|S \sin(ka). \quad (2.1.16)$$



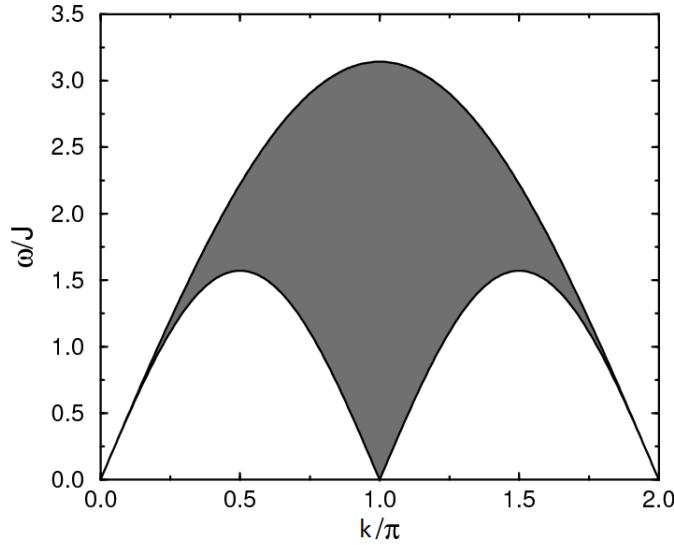
Slika 1: Prikaz feromagnetnih vzbuditev-magnonov v klasičnem Heisenbergovem modelu [13].

V primeru  $S = 1/2$  antiferomagnetne verige brez reda dolgega dosega se pojavljajo kot lastna vzbujena stanja drugačne vzbuditve, spinoni. V nasprotju z drugimi sistemmi, kjer ima osnovna vzbuditev spin  $S = 1$ , ima elementarna vzbuditev antiferomagnetne verige spin  $S = 1/2$  in ima tako fermionsko naravo. Spinone si je mogoče predstavljati kot domensko steno, ki ločuje dve domeni v osnovnem stanju. Ker najnižja vzbuditev iz osnovnega stanja vedno vodi do celoštevilčne spremembe skupnega spina, se spinoni vedno pojavljajo v parih.

Disperzija enega spinona je [14],

$$\omega = \frac{\pi}{2} J |\sin(ka)|. \quad (2.1.17)$$

Skupni valovni vektor vzbuditve je tako vsota neodvisnih valovnih vektorjev posameznih spinonov,  $k = k_1 + k_2$ , prav tako tudi za energijo oz. frekvenco velja:  $\omega = \omega_1 + \omega_2$ . Disperzija para spinonov je prikazana na sliki 2.



Slika 2: Disperzija spinonskega para.

Vzbuditve v Heisenbergovih modelih so vzrok za prenos topote v magnetnem sistemu. Toplotna prevodnost zavoljo spinonov v  $S = 1/2$  antiferomagnetu je bila že eksperimentalno obravnavana v nekaterih primerih spinskih verig, izmerjena vrednost pa je bila presenetljivo visoka.

## 2.2 Transportni pojavi

### 2.2.1 Kinetična teorija

V osnovi kinetična teorija opisuje transportne pojave v plinu, kjer molekule obravnavajo kot enake, sferične delce, ki se gibljejo v ravnih linijah, ter se odbijajo drug od drugega. Čas posameznega trka je privzet kot infinitizemalno kratek, edine sile v modelu pa so posledica trkov molekul.

Kasneje je Drude [15] zasnoval po njem imenovan model, ki na podoben način obravnavajo gibanje prevodnih elektronov v kovini. Ker je z Jordan-Wignerjevo transformacijo mogoče tudi spinske operatorje prevesti na fermionske operatorje, je v končni fazi Drudejev model kovin relevanten tudi za magnetne sisteme.

V kovini je zveza med električnim poljem  $\mathbf{E}$ , ki pospešuje prevodne elektrone, in gostoto toka elektronov  $\mathbf{j}$ , določena z upornostjo kovine  $\varrho$  tako, da velja,

$$\mathbf{E} = \varrho \mathbf{j}. \quad (2.2.1)$$

Gostota toka je vektor, ki je vzporeden s smerjo povprečne hitrosti elektronov ter sorazmeren s prostorninsko gostoto elektronov  $n$  in nabojem  $-e$ ,

$$\mathbf{j} = -nev. \quad (2.2.2)$$

V primeru odsotnosti zunanjega polja, so hitrosti posameznih elektronov povezane zgolj s termičnim gibanjem, porazdelitev njihovih hitrosti in smeri pa privede do ničelne povprečne hitrosti. V primeru zunanjega polja  $\mathbf{E}$  bo povprečna hitrost elektronov usmerjena proti smeri  $\mathbf{E}$ . Povprečna hitrost je mogoče izračunati po sledečem premisleku.

V primeru, da je  $t$  čas med dvema trkoma določenega elektrona, bo njegova hitrost po prvem trku  $\mathbf{v}_0$ , po drugem trku pa se bo spremenila za  $-e\mathbf{E}t/m$ . Predpostavimo, da je usmeritev, ki jo ima elektron po trku naključna, in tako v povprečenju ne upoštevamo  $\mathbf{v}_0$ . Povprečna hitrost je tako:  $\mathbf{v}_{povp} = -e\mathbf{E}\tau/m$ , kjer  $\tau$  predstavlja povprečni čas med dvema trkoma, zveza med  $\mathbf{j}$  in  $\mathbf{E}$  pa je določena z električno DC prevodnostjo  $\sigma_{DC}$ ,

$$\mathbf{j} = \sigma_{DC} \mathbf{E}, \quad (2.2.3)$$

$$\sigma_{DC} = \frac{ne^2\tau}{m}. \quad (2.2.4)$$

V primeru oscilirajočega zunanjega polja,  $\mathbf{E}(t) = Re(\mathbf{E}(\omega)e^{i\omega t})$ , velja podobna zveza,

$$\sigma_{AC}(\omega) = \frac{\sigma_{DC}}{1 - i\omega\tau}. \quad (2.2.5)$$

Električna prevodnost je analog spinski prevodnosti, ki bo obravnavana kasneje.

Drudejev model nudi tudi dobro razlago prej empirično določenega Wiedemann-Franzovega zakona. Le-ta trdi, da je razmerje med toplotno prevodnostjo,  $\kappa$ , in električno prevodnostjo,  $\sigma$ , v vseh kovinah sorazmerno s temperaturo. Razmerja  $\kappa/\sigma$  se za različne materiale sicer delno razlikujejo, a v grobem so si podobna.

K toplotni prevodnosti naj bi v Drudejevem modelu prispevali zgolj prevodni elektroni. Predpostavka izhaja iz tega, da naj bi kovine toploto prevajale opazno bolje, kot navadni izolatorji, torej je prispevek toplotne prevodnosti zavoljo ionov (fononskega nihanja) precej manjši.

Za majhne temperaturne gradiante v kovini je mogoče toplotno prevodnost  $\kappa$  definirati kot,

$$\mathbf{j}^E = -\kappa \nabla T, \quad (2.2.6)$$

kjer je  $\mathbf{j}^E$  vektor toplotnega toka. Toplotna prevodnost je definirana kot pozitivna konstanta, saj tok teče v smeri nasproti temperaturnemu gradientu (od toplejšega predela k hladnejšemu).

Pomembna predpostavka je, da ima elektron po trku energijo, ki ustreza lokalni temperaturi. V primeru temperaturnega gradiента imajo torej elektroni iz hladnejšega področja nižjo energijo in hitrost, elektroni iz toplejšega področja pa višjo hitrost, kar bo povzročilo skupni tok v smeri nasproti gradientu temperature.

Elektroni iz toplejšega področja bodo k toku na položaju  $x$  prispevali  $\frac{1}{2}nv\varepsilon(T[x+v\tau])$ , tisti iz hladnejšega področja pa  $\frac{1}{2}n(-v)\varepsilon(T[x-v\tau])$ , kjer je  $\varepsilon(T)$  energija pri dani temperaturi. Za skupni tok tako velja,

$$\mathbf{j}^E = \frac{1}{2}nv [\varepsilon(T[x-v\tau]) - \varepsilon(T[x+v\tau])] = nv^2\tau \frac{d\varepsilon(T)}{dT} \left( -\frac{dT}{dx} \right). \quad (2.2.7)$$

Upoštevajoč  $\langle v_x^2 \rangle = \frac{1}{d}v^2$ , kjer je  $d$  dimenzija sistema in  $n \frac{d\varepsilon}{dT} = c_V$ , dobimo,

$$\mathbf{j}^E = \frac{1}{d}v^2\tau c_V (-\nabla T), \quad (2.2.8)$$

$$\kappa = \frac{1}{d}v^2\tau c_V = \frac{1}{d}vl_p c_V. \quad (2.2.9)$$

Potrebno je poudariti, da so argumenti za pravilnost zgornjega izraza zgolj v grobem pravilni. Vseeno pa rezultati izpeljani iz Drudejevega modela držijo precej dobro. Dober primer je Wiedemann-Franzov zakon, ki nam, s kombiniranjem enačb 2.2.4 in 2.2.9, ter predpostavkama, ki v kovinah sicer ne veljata,  $\frac{1}{2}mv^2 = \frac{d}{2}k_B T$ ,  $c_V = \frac{d}{2}nk_B$  ( $k_B$ -Boltzmannova konstanta) da rezultat,

$$\frac{\kappa}{\sigma} = \frac{3}{2} \left( \frac{k_B}{e} \right)^2 T. \quad (2.2.10)$$

Konstanta  $\frac{3}{2}(k_B/e)^2 = 1.24 \times 10^{-13} \text{W}\Omega/\text{K}^2$  se od eksperimentalno izmerjenih razlikuje za faktor  $\sim 2$ . Vseeno pa je to plod dveh bistveno večjih napak, ki se izničita. Prispevek elektronov k specifični toploti je v resničnih, kvantnih sistemih približno  $100\times$  manjši, povprečna kinetična energija elektronov pa  $100\times$  večja.

### 2.2.2 Green-Kubo formula

Zgoraj omenjen pristop k reševanju problemov v povezavi s transportnimi pojavi uporablja klasični pristop k obravnavi gibanja interagirajočih delcev. Bolj splošno teorio transporta predstavlja t.i. Green-Kubov formalizem [16], ki ustreza tako klasičnim kot tudi kvantnim sistemom.

Formalizem obravnavava sistem v ravnovesju, v katerega je nato dodana majhna perturbacija. Zaradi odziva na perturbacijo se bodo opazljivke sistema odmaknile od svojih ravnovesnih vrednosti, njihov odziv pa bo, zaradi majhnosti perturbacije, sorazmeren zgolj z linearnim členom moči dodanega polja (perturbacije). Obravnavava takega, linearnega odziva na koncu privede do formule, ki poda relacijo med transportnimi koeficienti (električna, spinska, topotna prevodnost) in časovno odvisnimi korelacijskimi funkcijami ustreznih tokov v ravnovesnem stanju.

Obravnavajmo kvantni sistem v termodinamskem ravnovesju, ki ga opisuje časovno odvisni hamiltonian  $\hat{H}_0$  ter temperatura  $T$  ( $\beta = 1/k_B T$ ). Predpostavimo, da se je ob času  $t = -\infty$  vklopila perturbacija  $\hat{H}_p = f(t)\hat{B}$ , kjer  $f(t)$  predstavlja velikost motnje in tako je skupni hamiltonian,

$$\hat{H}_{sk} = \hat{H}_0 + \hat{H}_p. \quad (2.2.11)$$

Ob času  $t = -\infty$  je pričakovana vrednost poljubnega operatorja  $\hat{A}$  v sistemu enaka,

$$\langle \hat{A} \rangle_0 = \text{tr} \left\{ \rho_0 \hat{A} \right\}, \quad (2.2.12)$$

kjer  $\rho_0$  predstavlja gostotno matriko v ravnovesju.

Zaradi perturbacije, se bo pričakovana prednost  $\hat{A}$  spremenila za,

$$\delta \langle \hat{A}(t) \rangle = \text{tr} \left\{ \delta \rho(t) \hat{A} \right\}, \quad (2.2.13)$$

$$\delta \rho(t) = \rho(t) - \rho_0. \quad (2.2.14)$$

Rešitev za  $\delta \rho(t)$  je mogoče poiskati iz rešitve enačbe časovnega razvoja  $\rho(t)$ , Liouville-von Neumannove enačbe,

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = - [\rho, \hat{H}_{sk}]. \quad (2.2.15)$$

Velja še začetni pogoj  $\rho(-\infty) = \rho_0$ , [,] pa predstavlja operator komutacije. Zgornji izraz je nato mogoče razviti, ter obdržati zgolj linearne člene  $f(t)$ . V interakcijski sliki,  $\hat{A}^I(t) = e^{i\hat{H}_0 t} \hat{A} e^{-i\hat{H}_0 t}$ , je tako časovni razvoj motnje,

$$i\hbar \frac{\partial \delta \rho^I}{\partial t} = - [\rho, \hat{H}_p^I]. \quad (2.2.16)$$

Rešitev je:

$$\delta \rho^I(t) = \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' [\rho_0, \hat{H}_p^I(t')] \quad (2.2.17)$$

Upoštevaje relacijo [17]:

$$\left[ \hat{V}^I(t), e^{-\beta \hat{H}_0} \right] = -e^{-\beta \hat{H}_0} \int_0^\beta d\lambda \left[ \hat{V}^I(t - i\lambda\hbar), \hat{H}_0 \right], \quad (2.2.18)$$

in časovni razvoj v interakcijski sliki, velja:

$$\delta\rho^I(t) = \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \rho_0 \int_0^\beta d\lambda \left[ \hat{H}_p^I(t' - i\lambda\hbar), \hat{H}_0 \right] = - \int_{-\infty}^t dt' \rho_0 \int_0^\beta d\lambda \frac{\partial \hat{H}_p^I(t' - i\lambda\hbar)}{\partial t'}. \quad (2.2.19)$$

Za časovno odvisnost  $\delta \langle \hat{A}(t) \rangle = \text{tr} \{ \delta\rho(t) \hat{A} \}$  potem velja:

$$\begin{aligned} \delta \langle \hat{A}(t) \rangle &= \int_{-\infty}^t dt' f(t') \int_0^\beta d\lambda \text{tr} \{ \rho_0 \hat{B}^I(t' - i\lambda\hbar) \hat{A}^I(t) \} \\ &= \int_{-\infty}^t dt' f(t') \int_0^\beta d\lambda \langle \hat{B}^I(t' - i\lambda\hbar) \hat{A}^I(t) \rangle_0 \\ &= \int_{-\infty}^\infty \chi_{AB}(t - t') f(t'). \end{aligned}$$

Odziv  $\chi_{AB}(t - t') = \delta \langle \hat{A}(t) \rangle / \delta f(t')$  je torej povezan z ravnovesno korelacijsko funkcijo  $C_{AB}(t - t') = \langle \hat{B}^I(t - i\lambda\hbar) \hat{A}^I(t) \rangle_0$ . V klasični limiti  $\hbar \rightarrow 0$ , ki vodi do  $\hat{B}^I(t' - i\lambda\hbar) \rightarrow \hat{B}^I(t')$  in tako je mogoče formulo v drugi vrstici zgornje enačbe aproksimirati kot,

$$\delta \langle \hat{A}(t) \rangle = -\beta \int_{-\infty}^t dt' f(t') \langle \hat{B}(t') \hat{A}(t) \rangle_0. \quad (2.2.20)$$

Bolj specifična je denimo obravnavi spinske prevodnosti  $N$  spinov v 1D prostoru dimenzijsi  $N$ . Če je  $\hat{S}_l^z$  spin  $l$ -tega delca, bo kontinuitetna enačba spinski tok določala kot:  $\partial_t \hat{S}_l^z(t) + \hat{j}_{l+1}(t) - \hat{j}_l(t) = 0$ . Majhna perturbacija z magnetnim potencialom  $\phi(x, t)$  bo na hamiltonian vplivala z dodatnim potencialnim členom  $\hat{H}_p = \sum_l e^{\epsilon t} \phi_l(t) \hat{S}_l^z(t)$ .  $\epsilon$  tu predstavlja pozitiven parameter, ki določa jakost vključenega polja.

Spinski tok je analog operatorju  $\hat{A}$  iz enačbe 2.2.20, torej velja,

$$\langle \hat{j}_l(t) \rangle = \beta \int_{-\infty}^t dt' \sum_{l'}^N e^{\epsilon t'} \phi_{l'}(t') \langle \hat{S}_{l'}^z(t') \hat{j}_l(t) \rangle_0. \quad (2.2.21)$$

V zveznem sistemu dolžine  $L$  bi imela enačba obliko,

$$\langle \hat{j}(x, t) \rangle = \beta \int_{-\infty}^t dt' \int_0^L e^{\epsilon t'} dx' \phi(x', t') \left\langle \hat{S}^z(x', t') \hat{j}(x, t) \right\rangle_0. \quad (2.2.22)$$

Upoštevajoč zvezno kontinuitetno enačbo in delno integracijo dobimo,

$$\langle \hat{j}(x, t) \rangle = \beta \int_{-\infty}^t dt' e^{\epsilon t} \int_0^L dx' \frac{d\phi(x', t')}{dx'} \left\langle \hat{j}(x, t) \hat{j}(x', t') \right\rangle. \quad (2.2.23)$$

Izračun je pravilen zgolj za limito  $L \rightarrow \infty$ , saj v zadnjem računu niso upoštevani robni pogoji za ničelni tok. Korelacija toka je prav tako različna od 0 zgolj v limiti  $\epsilon \rightarrow 0$ . V primeru konstantnega člena  $\partial_{x'} \phi(x')$ , je izraz za spinsko prevodnost  $\sigma = j/\partial_{x'} \phi$ ,

$$\sigma = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \beta \int_0^\infty dt e^{-\epsilon t} \int_0^L dx' \left\langle \hat{j}(x, t) \hat{j}(x', 0) \right\rangle, \quad (2.2.24)$$

ozziroma diskretno,

$$\sigma = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \beta \int_0^\infty dt e^{-\epsilon t} \sum_{l'}^N \left\langle \hat{j}_l(t) \hat{j}_{l'}(0) \right\rangle, \quad (2.2.25)$$

Z uvedbo pojma skupnega toka  $\hat{J} = \sum_l \hat{j}_l$ , je končni izraz,

$$\sigma = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \beta e \int_0^\infty dt e^{-\epsilon t} \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \left\langle \hat{J}(t) \hat{J}(0) \right\rangle. \quad (2.2.26)$$

Izraz 2.2.26 predstavlja Green-Kubo formulo spinsko prevodnost  $\sigma$ .

Podoben pristop je tudi pri izpeljavi toplotne prevodnosti. Najprej je potrebno izpeljati efektivni hamiltonian, kjer linearna teorija predvideva majhno perturbacijo. Če lokalno gostotno matriko zapišemo kot,

$$\rho = \frac{1}{Z} e^{-\int dx \beta(x) \hat{\epsilon}(x, t)}, \quad (2.2.27)$$

kjer je  $\hat{\epsilon}(x, t)$  lokalna gostota energije in upoštevamo majhno krajevno temperaturno razliko,  $T(x) = T + \delta T(x)$ , velja,

$$\rho \sim \frac{1}{Z} e^{-\int dx \beta \hat{\epsilon}(x, t) (1 - \delta T(x)/T)}. \quad (2.2.28)$$

Efektivni hamiltonian je tako enak,

$$\hat{H}_p = -\frac{1}{T} \int dx \delta T(x) \hat{\epsilon}(x, t). \quad (2.2.29)$$

Velja tudi kontinuitetna enačba,  $\partial_t \hat{\epsilon}(x, t) + \partial_x \hat{j}_E(x, t) = 0$ . Po enačbi 2.2.20 velja,

$$\langle \hat{j}_E(x, t) \rangle = -\frac{1}{k_B T^2} \int_{-\infty}^t dt' \int_0^L dx' e^{\epsilon t'} \delta T(x') \left\langle \hat{\epsilon}(x', t') \hat{j}_E(x, t) \right\rangle_0, \quad (2.2.30)$$

kar je z delno integracijo mogoče prevesti na,

$$\langle \hat{j}_E(x, t) \rangle = -\frac{1}{k_B T^2} \int_{-\infty}^t dt' e^{\epsilon t} \int_0^L dx' \nabla T(x') \left\langle \hat{j}_E(x, t) \hat{j}_E(x', t') \right\rangle. \quad (2.2.31)$$

Upoštevamo Fourierov zakon,  $j_E = -\kappa \nabla T$  in integriramo po krajevnem delu, ter dobimo Green-Kubo zvezo za toplotno prevodnost,

$$\kappa = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{1}{k_B T^2} \int_0^\infty dt e^{\epsilon t} \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{L} \left\langle \hat{J}_E(t) \hat{J}_E(0) \right\rangle, \quad (2.2.32)$$

kjer  $\hat{J}_E(t)$  predstavlja skupni energijski tok.

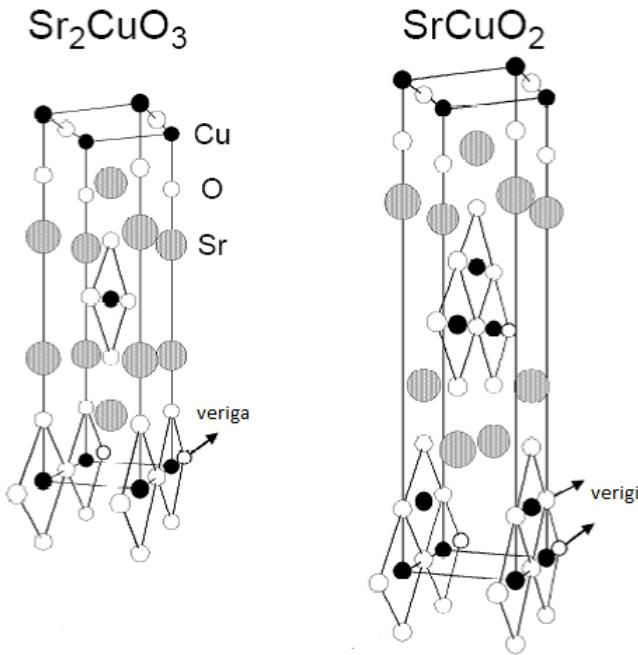
### 3 Eksperimentalni rezultati

Motivacija dela je med drugim tudi primerjava teoretično pridobljenih rezultatov z nekaterimi eksperimentalnimi meritvami, predvsem na neurejenih spinskih verigah. Poznanih je vedno več materialov, ki jih dobro opiše Heisenbergov hamiltonian in čeprav so spinske verige v naravi zgolj kvantne, obstaja nekaj povezav tudi s klasičnim modelom. Predvsem pri materialih z višjimi vrednostmi spina ( $S = 5/2$ , itd.), a tudi spinske verige z nizkim spinom ( $S = 1/2$ ), ki so bolj pogoste in posledično bolj eksperimentalno raziskane, kažejo nekaj podobnosti s klasičnim modelom. V sledečem poglavju bo torej predstavljenih nekaj eksperimentalnih rezultatov

#### 3.1 Primeri spinskih verig

Spinske verige v naravi seveda niso popolnoma realizirane, saj Heisenbergov hamiltonian ni edini prispevek k skupnemu hamiltonianu. Vseeno pa je mogoče nekaj snovi obravnavati kot zelo dobre aproksimacije enodimensionalnega magnetizma.

Magnetni materiali večinoma sestojijo iz elementov prehodnih kovin, ki imajo delno zapolnjene  $3d$  orbitale, ali pa elementov redkih zemelj z delno zapolnjenimi  $4f$  orbitalami. Precej primerov spinskih verig je mogoče najti med t.i. kuprati, ki vsebujejo elementa  $Cu$  in  $O$ . Dva izmed njih sta kupratna kristala  $SrCuO_2$  in  $Sr_2CuO_3$ , ki predstavljata antiferomagnetni  $S = 1/2$  spinski verigi oziroma spinski lestvi.



Slika 3: Kristalni strukturi kupratov  $Sr_2CuO_3$  in  $SrCuO_2$ . Prikazana je tudi smer v kateri poteka spinska veriga [18].

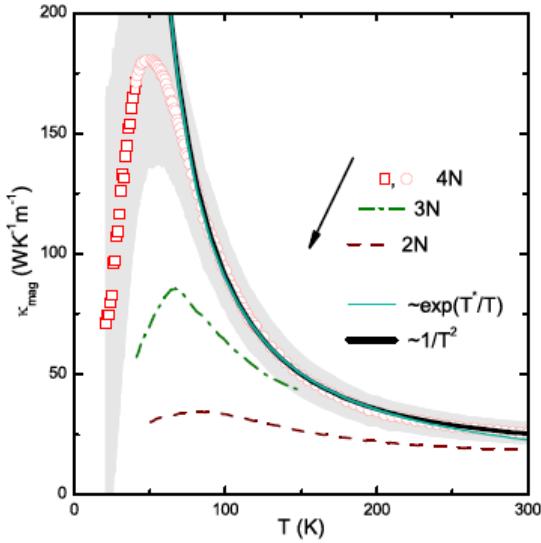
Kristal  $Sr_2CuO_3$  sestoji iz blokov  $CuO_3$ , kjer ioni  $Cu - O - Cu$  (slika 3) predstavljajo spinsko verigo z indirektno izmenjalno interakcijo. Vrednost izmenjalnega integrala v

$Sr_2CuO_3$  je med večjimi poznanimi, saj velja  $J/k_B \sim 2150\text{K}$  [19], sklopitve pa so izotropne. Spinske verige so ločene z atomi  $Sr$ , kar vodi do zelo nizkih interakcij med sosednjimi verigami,  $J'$ . Velja:  $J'/k_B \sim 0.02\text{K}$ . Nadaljni eksperimenti kažejo tudi, da se kristal uredi tridimenzionalno pod temperaturo prehoda (Neelovo temperaturo)  $T_N \sim 5.4\text{K}$  [20]. Vse te lastnosti naredijo kuprat  $Sr_2CuO_3$  zelo dober približek Heisenbergove  $S = 1/2$  antiferomagnetne verige pri temperaturah nad  $T_N$ .

V kristalu  $SrCuO_2$  se dve spinski verigi nahajata druga nad drugo (spinska lestev) in imata močnejše medsebojne interakcije med sosednjimi  $Cu^{2+}$  ioni  $J'/J \sim 0.1 - 0.2$  [21], pri čemer je vrednost  $J/k_B \sim 2100\text{K}$ . Zaradi močnejših interakcij med sosednjimi verigami kuprat  $SrCuO_2$  po definiciji bolj ustreza spinski lestvi, a frustracija kristalne mreže preprečuje 3D ureditev dolgega dosega pri temperaturah  $T > T_N \sim 1.5\text{K}$  [22]. Tako se pri temperaturah višjih od  $T_N$  tudi sosednje spinske verige v  $SrCuO_2$  obravnavajo kot samostojne.

### 3.2 Toplotna prevodnost kristalov $Sr_2CuO_3$ in $SrCuO_2$

Zaradi svojih velikih vrednosti izmenjalnih integralov in posledično visokih relevantnih temperaturah sta kuprata  $Sr_2CuO_3$  in  $SrCuO_2$  tarča številnih eksperimentalnih raziskav [2,3,4] z namenom preučevanja temperaturne odvisnosti toplotne prevodnosti in povprečne proste poti magnetnih vzbuditev.

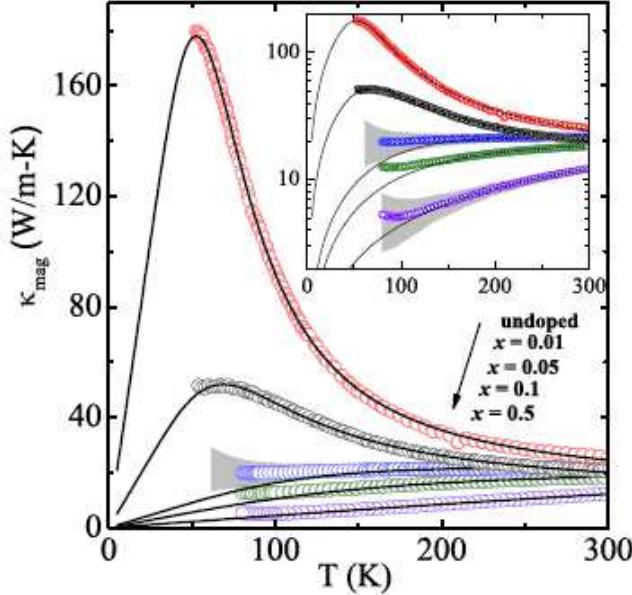


Slika 4: Eksperimentalno izmerjeni spinonski prispevki k toplotni prevodnosti  $Sr_2CuO_3$ . Senčeno področje prikazuje negotovosti meritev [3].

Slika 4 prikazuje magnetni prispevek k toplotni prevodnosti  $Sr_2CuO_3$ . Eksperimentalne meritve toplotne prevodnosti zajamejo tudi prispevek fononov, ki pa ga je mogoče upravičeno preprosto odšteti, saj je fononska toplotna prevodnost v kristalu izotropna, medtem ko skupna prevodnost kaže anizotropijo v smeri verige. Čeprav se v spinskih verigah s spinom  $S = 1/2$  pričakuje balistični toplotni transport, je sisanje magnetnih vzbuditev na nečistočah in fononih razlog za končne, a še vedno zelo velike, vrednosti toplotne prevodnosti. Na sliki je prikazana odvisnost magnetne toplotne prevodnosti za

več različnih čistosti kristala. Oznaka  $4N$  pomeni 99.99% čist kristal,  $3N$  99.9% čistočo, ipd. Opazi se močan vpliv nečistoč na toplotno prevodnost pri nizkih temperaturah, kar je mogoče povezati z močnejšim sipanjem vzbuditev v manj čistih kristalih.

Eksperimentalno je bil izmerjen tudi vpliv dopiranja kristala  $Sr_2CuO_3$  z atomi  $Ca$ , ki nadomestijo atome  $Sr$  [4]. Ker atoma  $Ca$  oz  $Sr$  ne ležita na spinski verigi je njun vpliv povezan zgolj z vplivom na lokalne izmenjalne integrale v verigi in tako je način dopiranja bolj relevanten kot eksperimentalno preučevanje verig, ki direktno vsebujejo nečistoče. Dopiranje kristala tako tudi ustreza teoretičnemu modelu, uporabljenem v tem delu.



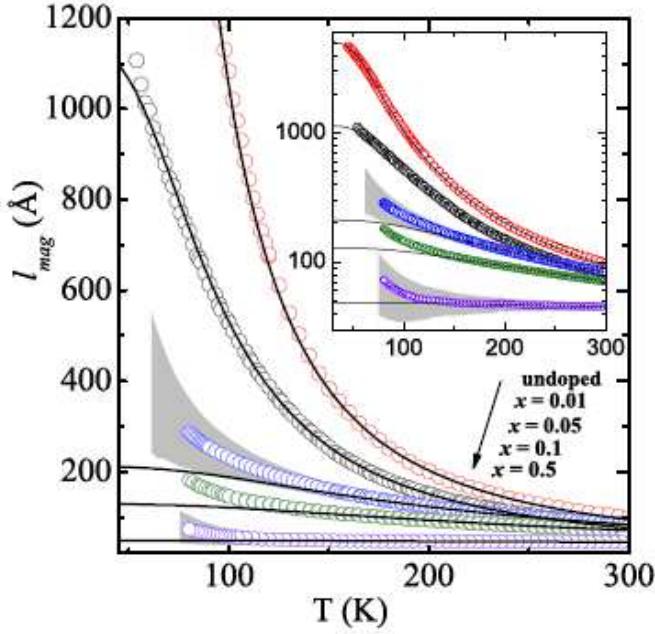
Slika 5: Magnetni del toplotne prevodnosti kristala  $(Sr_{1-x}Ca_x)_2CuO_3$  za različne jakosti dopiranja. Priložen je tudi logaritemski graf. Sivo območje prikazuje območje, kjer so meritve, zaradi odstetega prispevka fononov, niso zanesljive [4].

Slika 5 prikazuje vpliv koncentracije dopiranega elementa  $Ca$ ,  $x$ , na magnetno toplotno prevodnost kristala  $(Sr_{1-x}Ca_x)_2CuO_3$ . Že pri majhnih koncentracijah  $x = 0.01$  in  $x = 0.05$  je mogoče opaziti močan upad toplotne prevodnosti.

Povprečna prosta pot spinonov, ki je s toplotno prevodnostjo pri nizkih temperaturah povezana kot [23],

$$l_p = \frac{3\hbar}{\pi N_s k_B^2 T} \kappa, \quad (3.2.1)$$

kjer je  $N_s$  število spinskih verig na enoto površine, je prav tako močno odvisna od koncentracije dopiranega elementa (slika 6).



Slika 6: Povprečna prosta pot spinonov za različne vrednosti  $x$  [4]

V primeru nizke koncentracije ( $x = 0.01$ ) se povprečna prosta pot razteza čez več kot 1300 spinskih celic kristala  $(Sr_{1-x}Ca_x)_2CuO_3$ , medtem ko se pri  $x = 0.5$  razteza zgolj še prek 12 celic.

### 3.3 Spinske verige z višjim spinom

Primera spinskih verig z višjim spinom sta manganova klorida TMMC (Tetrametilamonijev manganov triklorid -  $(CH_3)_4NMnCl_3$ ) in DMMC (dimetilamonijev manganov triklorid -  $(CH_3)_2NH_2MnCl_3$ ), kjer ioni  $Mn^{2+}$ , ločeni z ioni  $Cl^-$  vodijo do spinske verige s  $S = 5/2$  in izotropno antiferomagnethno izmenjalno interakcijo [24]. Spinske verige z višjimi vrednostmi spina kažejo precej bolj klasično obnašanje in tako so bolj primerne za primerjavo s klasičnim modelom, po drugi strani pa so materiali z višjim spinom običajno bolj anizotropni.

Vrednost izmenjalnega integrala v TMMC in DMMC je majhna v primerjavi s kuprati,  $J/k_B \sim 12.5\text{K}$ , medtem ko so interakcije med sosednjimi verigami še precej manjše ( $J'/J \sim 10^{-4}$  za TMMC in  $J'/J \sim 10^{-4}$  za DMMC). Temperaturi prehoda v 3D ureditev sta tako precej nizki,  $T_N = 0.85\text{K}$  (TMMC) in  $T_N = 3.60\text{K}$  (DMMC).

## 4 Transport v neurejnih spinskih verigah

### 4.1 Model

V delu se obravnava model neurejene, klasične Heisenbergove antiferomagnetne verige s hamiltonianom,

$$H = \sum_i J_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+1} - \mu \sum_i \mathbf{B}_i \cdot \mathbf{S}_i, \quad (4.1.1)$$

kjer velja  $J_i > 0$ . V klasičnem modelu so spinski operatorji kar trodimenzionalni vektorji,  $\mathbf{S}_i$ , ki imajo normo  $S$ .

V magistrski nalogi sem raziskal obnašanje modela s slučajnimi sklopitvami  $J_i$  in njegove transportne lastnosti na vsej temperaturni skali. V modelu bo nered predstavljen kot enakomerna porazdelitev sklopitvenih konstant  $J$  v intervalu,

$$J - \delta J \leq J_i \leq J + \delta J, \quad (4.1.2)$$

$$0 \leq \delta J < J. \quad (4.1.3)$$

Obravnavane bodo različne moči nereda:  $\delta J = 0.2J, 0.4J, 0.6J, 0.8J$ , večja vrednost  $\delta J$  pa pomeni bolj neurejene sklopitve med sosednjima ionoma. V zgoraj omenjenih kristalih popolnoma naključni vrednosti  $x = 0.5$  ( $x$ - relativna koncentracija dopiranega elementa) ustrezata  $\delta J \sim 0.6J$ . Enakomerna porazdelitev sicer fizikalno ni tako upravičena kot normalna porazdelitev, kjer pa je verjetnost za  $J_i = 0$  končna in tako se na mestu  $i$  veriga prekine, kar kvari kakovost numeričnega računanja.

#### 4.1.1 Dinamične enačbe Heisenbergovega modela

Za spinski vektor  $\mathbf{S}_i$  velja kvantnomehanska dinamična enačba,

$$i\hbar \frac{d\mathbf{S}_i}{dt} = [\mathbf{S}_i, H] = \left[ \mathbf{S}_i, \sum_i J_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+1} - g\mu_B \sum_i \mathbf{B}_i \cdot \mathbf{S}_i \right], \quad (4.1.4)$$

kjer  $[,]$  predstavlja operator komutacije. Za komponente vektorja spina veljajo komutacijska pravila,

$$[S_i^\alpha, S_j^\beta] = i\delta_{ij}\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}S_i^\gamma. \quad (4.1.5)$$

Indeksi  $\alpha, \beta, \gamma$  so elementi množice  $\{x, y, z\}$ ,  $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$  pa je simbol Levi-Civita. Z upoštevanjem zgornje komutacijske zveze, ter pravila,  $[A, BC] = B[A, C] + [A, B]C$ , se dinamična enačba lahko zapiše kot:

$$\hbar \frac{d\mathbf{S}_i}{dt} = (J_{i-1} \mathbf{S}_{i-1} \times \mathbf{S}_i + J_i \mathbf{S}_{i+1} \times \mathbf{S}_i) - g\mu_B \mathbf{B}_i \times \mathbf{S}_i = -\mathbf{S}_i \times \frac{\partial H}{\partial \mathbf{S}_i}. \quad (4.1.6)$$

Enak rezultat je mogoče dobiti tudi s klasičnomehansko obravnavo, kjer je hamiltonian mogoče zapisati kot,

$$H = -\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{B}_i^{ef}, \quad (4.1.7)$$

pri čemer je magnetni moment  $i$ -tega spina v klasični sliki enak,  $\mathbf{m}_i = -\mu \mathbf{S}_i = -\mu S \mathbf{e}_i$ , kjer je  $S$  velikost spina,  $\mathbf{e}_i$  enotski vektor,  $\mu = g\mu_B/\hbar = ge/mc$  pa absolutna vrednost magnetnega momenta spina. Posledično je efektivno magnetno polje, ki deluje na spin  $i$ ,

$$\mathbf{B}_i^{ef} = \frac{1}{\mu} \frac{\partial H}{\partial \mathbf{S}_i} = \frac{1}{\mu} (J_{i-1} \mathbf{S}_{i-1} + J_i \mathbf{S}_{i+1}) - \mathbf{B}_i. \quad (4.1.8)$$

$\mathbf{B}_i^{ef}$  z navorom deluje na spin (magnetni moment)  $\mathbf{S}_i$  tako, da slednji precesira okoli smeri polja, saj je mogoče opaziti, da dinamična enačba ohranja velikost skalarnega produkta  $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{B}_i^{ef}$ . Velja torej,

$$\frac{d\mathbf{S}_i}{dt} = -\mathbf{S}_i \times \mu \mathbf{B}_i^{ef} = -\mathbf{S}_i \times \frac{\partial H}{\partial \mathbf{S}_i}, \quad (4.1.9)$$

kar vodi do enakega rezultata kot pri kvantnomehanskih enačbah (en. 4.1.6).

Enačbe gibanja je mogoče prepisati v brezdimenzijsko obliko kot,

$$\frac{d}{dt} \mathbf{e}_i = -\mathbf{e}_i \times (c_{i-1} \mathbf{e}_{i-1} + c_i \mathbf{e}_{i+1} - b_i \mathbf{b}_i), \quad (4.1.10)$$

pri čemer  $c_i = J_i/J$ ,  $b_i = \mu |\mathbf{B}_i|/JS$  in  $\tilde{t} = tJS$  predstavljajo brezdimenzijske vrednosti skloplitve  $J_i$ , magnetnega polja  $|\mathbf{B}_i|$  in časa  $t$ ,  $\mathbf{b}_i$  pa je enotski vektor, ki kaže v smeri magnetnega polja na mestu  $i$ . Vrednosti  $c_i$  so tako enakomerno porazdeljene v intervalu,

$$1 - \delta \leq c_i \leq 1 + \delta. \quad (4.1.11)$$

Brezdimenzijska količina energije je definirana kot,  $\tilde{E} = E/JS^2$ , brezdimenzijska temperatura pa:  $\tilde{T} = k_B T/JS^2$ .

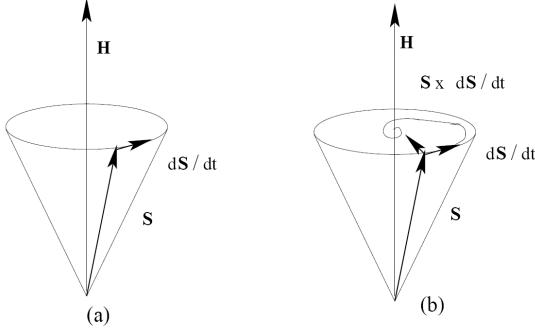
Ker je v resničnih sistemih mogoče opaziti, da se nad določeno velikostjo gostote magnetnega polja vsi spini obrnejo v smeri  $\mathbf{B}$ , torej se precesija ne ohranja, je v enačbo dodan še empirični člen, ki predstavlja dušenje in sili spine v smer magnetnega polja [25],

$$\frac{d\mathbf{S}_i}{dt} = -\mathbf{S}_i \times \frac{\partial H}{\partial \mathbf{S}_i} + \alpha \mathbf{S}_i \times \frac{d\mathbf{S}_i}{dt}. \quad (4.1.12)$$

Z združitvijo obeh členov  $d\mathbf{S}_i/dt$  na levi in desni strani, se da enačbo prepisati kot,

$$(1 + \alpha^2) \frac{d\mathbf{S}_i}{dt} = -\mathbf{S}_i \times \frac{\partial H}{\partial \mathbf{S}_i} + \alpha \mathbf{S}_i \times (\mathbf{S}_i \times \frac{\partial H}{\partial \mathbf{S}_i}). \quad (4.1.13)$$

Zgornjo enačbo imenujemo Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) enačba, ki popisuje časovno odvisno obnašanje magnetizacije v realnih sistemih, kjer so neizogibno prisotne tudi izgube energije (slika 7).



Slika 7: Prikaz dinamike spina (a) v prisotnosti efektivnega magnetnega polja in (b) pri dodanem dušenju [26].

V efektivnem polju lahko poleg zunanjega magnetnega polja in prispevka sosednjih spinov nastopajo tudi prispevki zaradi termičnih fluktuacij,

$$\mathbf{B}_i^{ef} = \frac{1}{\mu} (J_{i-1}\mathbf{S}_{i-1} + J_i\mathbf{S}_{i+1}) - \mathbf{B}_i - \xi_i = \frac{1}{\mu} \left( \frac{\partial H}{\partial \mathbf{S}_i} - \xi_i \right), \quad (4.1.14)$$

kjer člen  $\xi_i$  predstavlja termični (beli) šum z lastnostmi,

$$\langle \xi_i(t) \rangle = 0, \quad \langle \xi_i(t_1) \cdot \xi_j(t_2) \rangle = 2\alpha k_B T \delta_{ij} \delta(t_1 - t_2). \quad (4.1.15)$$

LLG enačba ima v tem primeru obliko:

$$(1 + \alpha^2) \frac{d\mathbf{S}_i}{dt} = \mathbf{S}_i \times \left( \xi_i - \frac{\partial H}{\partial \mathbf{S}_i} \right) - \alpha \mathbf{S}_i \times \left[ \mathbf{S}_i \times \left( \xi_i - \frac{\partial H}{\partial \mathbf{S}_i} \right) \right]. \quad (4.1.16)$$

Medtem ko enačba brez dušenja ohranja skupno vrednost spina in energije, lahko LLG enačbo uporabimo v sistemih s konstantno temperaturo.

#### 4.1.2 Definicija spinskega in toplotnega toka v Heisenbergovem modelu

Za gostoto ohranjene fizikalne količine  $\rho(\mathbf{r})$  (spin, energija, naboj) veljajo kontinuitetne enačbe. Če naj se gostota količine ohranja v nekem prostoru, je edini način njenega spremenjanja skozi čas, da se določen del količine prenese iz enega dela prostora v drug del s pomočjo gostote toka  $\mathbf{j}(\mathbf{r})$ . Kontinuitetna enačba povezuje količini kot,

$$\frac{\partial \rho(\mathbf{r})}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j}(\mathbf{r}) = 0. \quad (4.1.17)$$

V primeru Heisenbergovega modela v magnetnem polju  $\mathbf{B}(x) = (0, 0, B(x))$ , sta zanimala predvsem spinski in toplotni tok, ki vplivata na lokalno gostoto magnetizacije  $S_i^z$  in lokalno gostoto energije,

$$h_i = \frac{1}{2} [J_{i-1}\mathbf{S}_{i-1} \cdot \mathbf{S}_i + J_i\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+1}] - S_i^z B_i. \quad (4.1.18)$$

Tako velja kontuitetna enačba za diskretne sisteme,

$$(j_{i+1}^S - j_i^S)/a = -\frac{\partial S_i^z}{\partial t}, \quad (4.1.19)$$

$$(j_{i+1}^E - j_i^E)/a = -\frac{\partial h_i}{\partial t}. \quad (4.1.20)$$

$a$  predstavlja razdaljo med dvema delcema na spinski verigi. Upoštevajoč klasično-mehansko enačbo za dinamiko spinov, opisano v prejšnjem poglavju, za lokalni spinski in topotni tok velja zveza,

$$j_i^S = J_i a (S_i^x S_{i+1}^y - S_i^y S_{i+1}^x), \quad (4.1.21)$$

$$\begin{aligned} j_i^E = & \frac{a}{2} J_{i-1} [J_{i-2} (\mathbf{S}_{i-2} \times \mathbf{S}_{i-1}) \cdot \mathbf{S}_i + J_i (\mathbf{S}_{i-1} \times \mathbf{S}_i) \cdot \mathbf{S}_{i+1}] \\ & - \frac{a}{2} J_{i-1} [(\mathbf{S}_{i-1} \times \mathbf{S}_i) \cdot (\mathbf{B}_{i-1} + \mathbf{B}_i)]. \end{aligned} \quad (4.1.22)$$

Za skupni tok velja,  $J^{S,E} = \int_V j^{S,E}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$  ali v diskretnem primeru Heisenbergovega modela:  $J^{S,E} = a \sum_i j_i^{S,E}$ .

Opozoriti velja, da je spinski tok vektor, saj prenaša spin, ki je 3D vektorska količina. Popolna kontinuitetna enačba je tako vektorske oblike,

$$(\mathbf{j}_{i+1}^S - \mathbf{j}_i^S)/a = -\frac{\partial \mathbf{S}_i}{\partial t}. \quad (4.1.23)$$

V tem primeru je za sistem v magnetnem polju rešitev mnogo manj trivialna od rešitve za  $S^z$ . Za člen, odvisen od magnetnega polja, ki ga pri enačbi za  $z$  komponento ni, divergencije ni mogoče izračunati, količini  $S^x$  in  $S^y$  se torej ne ohranjata. V odsotnosti magnetnega polja se enačbe poenostavijo in rešitev je,

$$\mathbf{j}_i^S = J_i a \mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_{i+1}. \quad (4.1.24)$$

Spinski in energijski tok v brezdimenzijski obliki sta,

$$\tilde{j}_i^S = c_i (e_i^x e_{i+1}^y - e_i^y e_{i+1}^x), \quad (4.1.25)$$

$$\begin{aligned} \tilde{j}_i^E = & \frac{1}{2} c_{i-1} [c_{i-2} (\mathbf{e}_{i-2} \times \mathbf{e}_{i-1}) \cdot \mathbf{e}_i + c_i (\mathbf{e}_{i-1} \times \mathbf{e}_i) \cdot \mathbf{e}_{i+1}] \\ & - \frac{1}{2} c_{i-1} [(\mathbf{e}_{i-1} \times \mathbf{e}_i) \cdot (b_{i-1} \mathbf{b}_{i-1} + b_i \mathbf{b}_i)]. \end{aligned} \quad (4.1.26)$$

Velja  $\tilde{J}^S = \sum_i \tilde{j}_i^S = J^S / (JS^2 a^2)$  in  $\tilde{J}^E = \sum_i \tilde{j}_i^E = J^E / (J^2 S^3 a^2)$ .

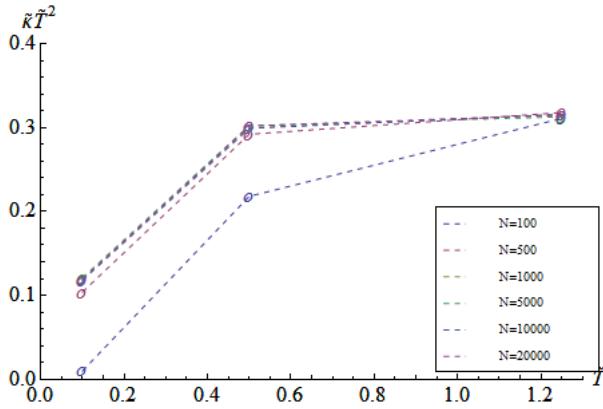
## 4.2 Metoda računanja prevodnosti

Na topotno in spinsko prevodnost močno vpliva temperatura sistema. V limiti visokih temperatur, kjer je povprečna prosta pot magnetnih vzbuditev konstantna, je po vzoru kinetične teorije plinov pričakovati, da bo veljalo  $\kappa \propto c_V$ . V limiti nizkih temperatur pa ima povprečna prosta pot, ki je odvisna od velikosti nereda  $\delta J$ , pomemben vpliv na transportne pojave. Za popolno poznavanje prenosa toplote je torej potrebno upoštevati vse energijske skale.

Začetna stanja, ki določajo temperaturo sistema, nam podajajo rešitve stohastične Landau-Lifshitz-Gilbertove enačbe po dolgih časih,  $\tilde{t} \sim 1000$ .

V modelu numerične integracije je bilo v končni fazi upoštevanih  $N = 10^4$  delcev, kar je sprejemljiva velikost sistema, da ob periodičnih robnih pogojih  $\mathbf{S}_1 = \mathbf{S}_N$ , efekti končnega sistema nimajo znatnega vpliva.

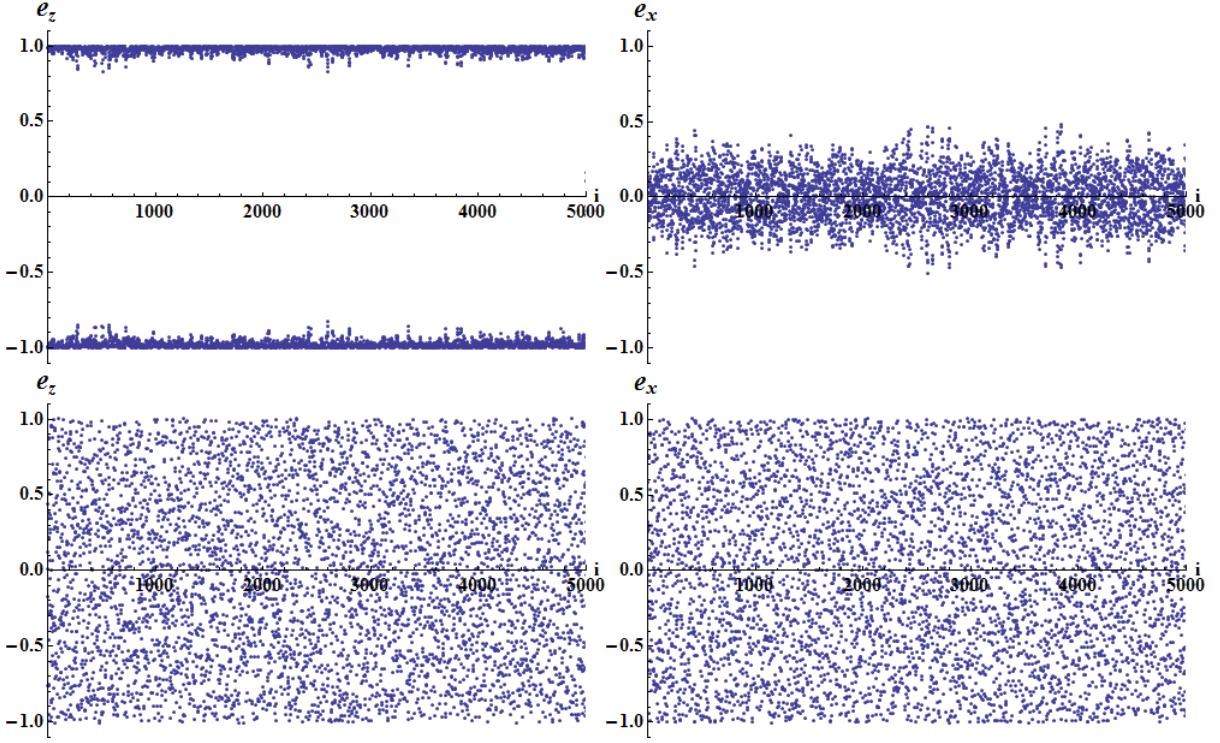
Simuliral sem tudi verige z  $N = 100, 500, 1000, 5000, 20000$  za temperature  $\tilde{T} = k_B T / JS^2 = 0.1, 0.5, 1.2$  in primerjal rezultate izračunane toplotne prevodnosti. Za  $N \geq 1000$  so bili rezultati pri vseh temperaturah enaki do  $\sim 1\%$  natančno. Izbrano število delcev je tako kompromis med kvaliteto rezultata in hitrostjo delovanja programa.



Slika 8: Primerjava vrednosti integrala korelacijskih funkcij toplotnega toka za  $N = 100, 500, 1000, 5000, 10000, 20000$ .

Vrednost parametra dušenja je bila postavljena na  $\alpha = 0.1$ , kar je zgornja vrednost za dušenje v magnetnih materialih v naravi [26].

LLG enačbo numerično integriramo s poljubnimi začetnimi pogoji in periodičnimi robnimi pogoji, ter po dolgih časih dobimo sistem z energijo, ki ustreza dani temperaturi. Ker je enačba stohastična, bo vsaka vnovična integracija pomenila drugačna končna stanja in tudi drugačno energijo. Porazdelitev energije pa je odvisna od izbrane temperature. Končna stanja nato uporabimo kot začetna stanja pri numerični integraciji enačbe (4.1.10).



Slika 9: Termična stanja spinskega sistema, določena z LLG enačbo za sistem z  $N = 5000$  delci. Zgoraj so predstavljene velikosti komponent  $S_p^z$  in  $S_p^x$  za nizko temperaturo  $\tilde{T} = 0.01$  in energijo  $\tilde{E}/N = -0.99$ , spodaj pa za višjo temperaturo  $\tilde{T} = 0.60$  in energijo  $\tilde{E}/N = -0.51$ .

Pri numerični integraciji je uporabljena metoda Runge-Kutta reda 4 (RK4). V modelu imamo set  $3N$  enačb z  $N$  vezmi (zaradi ohranitve dolžine spinov), ki jih je v vektorski obliki mogoče zapisati kot,

$$\frac{\partial \mathbf{y}}{\partial t} = \mathbf{f}(\mathbf{y}), \quad \mathbf{y}(0) = \mathbf{y}_0, \quad (4.2.1)$$

kjer je v tem primeru  $\mathbf{y}(t) = (\mathbf{S}_1(t), \dots, \mathbf{S}_N(t))$ . Metoda Runge-Kutta reda 4 aproksimira časovni razvoj  $\mathbf{y}(t)$  z,

$$\mathbf{y}_{n+1} = \mathbf{y}_n + \frac{h}{6}(\mathbf{K}_1 + 2\mathbf{K}_2 + 2\mathbf{K}_3 + \mathbf{K}_4), \quad (4.2.2)$$

$$t_{n+1} = t_n + h, \quad (4.2.3)$$

za funkcije  $\mathbf{K}_1$ ,  $\mathbf{K}_2$ ,  $\mathbf{K}_3$  in  $\mathbf{K}_4$  pa velja,  $\mathbf{K}_1 = \mathbf{f}(t_n, \mathbf{y}_n)$ ,  $\mathbf{K}_2 = \mathbf{f}(t_n + h/2, \mathbf{y}_n + \mathbf{K}_1 h/2)$ ,  $\mathbf{K}_3 = \mathbf{f}(t_n + h/2, \mathbf{y}_n + \mathbf{K}_2 h/2)$ ,  $\mathbf{K}_4 = \mathbf{f}(t_n + h, \mathbf{y}_n + \mathbf{K}_3 h)$ .

Napaka pri metodi RK4 je reda  $h^4$ . V delu sem za nižje temperature ( $\tilde{T} < 0.5$ ), kjer je dinamika počasnejša, uporabil  $h = 0.01$ , pri višjih temperaturah pa  $h = 0.005$ . Relativna napaka pri koraku je torej reda  $10^{-10} - 10^{-8}$ . Korakov je bilo  $2 \times 10^6$ , torej skupna relativna napaka ne presega 1%.

Kot je bilo prikazano v poglavju 2.2.2, je spinsko in toplotno prevodnost mogoče določiti po Green-Kubo formuli, ki ima brezdimenzijsko obliko,

$$\tilde{\sigma} = \frac{\sigma}{Sa^3} = \lim_{\tau \rightarrow \infty} \int_0^\tau \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N\tilde{T}} \left\langle \tilde{J}^S(\tilde{t}) \tilde{J}^S(0) \right\rangle d\tilde{t}, \quad (4.2.4)$$

$$\tilde{\kappa} = \frac{\kappa}{k_B JS a^3} = \lim_{\tau \rightarrow \infty} \int_0^\tau \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N\tilde{T}^2} \left\langle \tilde{J}^E(\tilde{t}) \tilde{J}^E(0) \right\rangle d\tilde{t}. \quad (4.2.5)$$

Korelacijska funkcija  $\langle J(t)J(0) \rangle$  mora biti zaradi stohastičnih lastnosti LLG enačbe povprečena tudi po začetnih stanjih. Vprašanje končne vrednosti  $\sigma$  in  $\kappa$ , ter posledično vprašanje o načinu transporta, balističnem ali difuzivnem, se torej zreducira na vprašanje o konvergenci korelacijskih funkcij tokov.

### 4.3 Linearizacija enačb gibanja

Pred numeričnimi izračuni toplotne in spinske prevodnosti je smotrno preveriti, kako se sistem obnaša v bližini osnovnega stanja in kako dodan nered vpliva na nizkoenergijske vzbuditve.

V limiti nizkih temperatur pričakujemo antiferomagnet v stanju, ki je blizu osnovnemu stanju  $\mathbf{e}_i = (0, 0, (-1)^i)$  (slika 9), kar omogoča linearizacijo enačbe gibanja (en. 4.1.10), saj velja  $|e^x|, |e^y| \ll |e^z| \approx 1$ . Magnetno polje naj zaradi preprostosti kaže v smeri  $z$ ,  $\mathbf{b}_i = (0, 0, b_i)$ . Zaradi lastnosti Neelovega osnovnega stanja v klasičnem antiferomagnetu obstajata dve podmreži [27]. Na podmreži A se nahajajo spini s sodimi indeksi  $2i$ , na drugi podmreži B pa spini z lihimi indeksi. Z zanemaritvijo linearnih členov in upoštevanjem  $e_{2i}^z = 1$ ,  $e_{2i+1}^z = -1$ , dobimo sistem enačb,

$$\begin{aligned} de_{2i}^x/d\tilde{t} &= [e_{2i-1}^y c_{2i-1} + e_{2i}^y (c_{2i-1} + c_{2i} + b_{2i}) + e_{2i+1}^y c_{2i}], \\ de_{2i}^y/d\tilde{t} &= -[e_{2i-1}^y c_{2i-1} + e_{2i}^y (c_{2i-1} + c_{2i} - b_{2i}) + e_{2i+1}^y c_{2i}], \end{aligned} \quad (4.3.1)$$

za podmrežo A, na podmreži B pa:

$$\begin{aligned} de_{2i+1}^x/d\tilde{t} &= -[e_{2i}^y c_{2i} + e_{2i+1}^y (c_{2i} + c_{2i+1} - b_{2i+1}) + e_{2i+2}^y c_{2i+1}], \\ de_{2i+1}^y/d\tilde{t} &= [e_{2i}^y c_{2i} + e_{2i+1}^y (c_{2i} + c_{2i+1} + b_{2i+1}) + e_{2i+2}^y c_{2i+1}]. \end{aligned} \quad (4.3.2)$$

Z uvedbo  $S^+ = e^x + ie^y$ , lahko enačbe gibanja zapišemo,

$$\begin{aligned} iS_{2i}^+/d\tilde{t} &= c_{2i-1} (S_{2i}^+ + S_{2i-1}^+) + c_{2i} (S_{2i+1}^+ + S_{2i}^+) + S_{2i}^+ b_{2i}, \\ iS_{2i+1}^+/d\tilde{t} &= -c_{2i} (S_{2i}^+ + S_{2i+1}^+) - c_{2i+1} (S_{2i+1}^+ + S_{2i+2}^+) + S_{2i+1}^+ b_{2i+1}. \end{aligned} \quad (4.3.3)$$

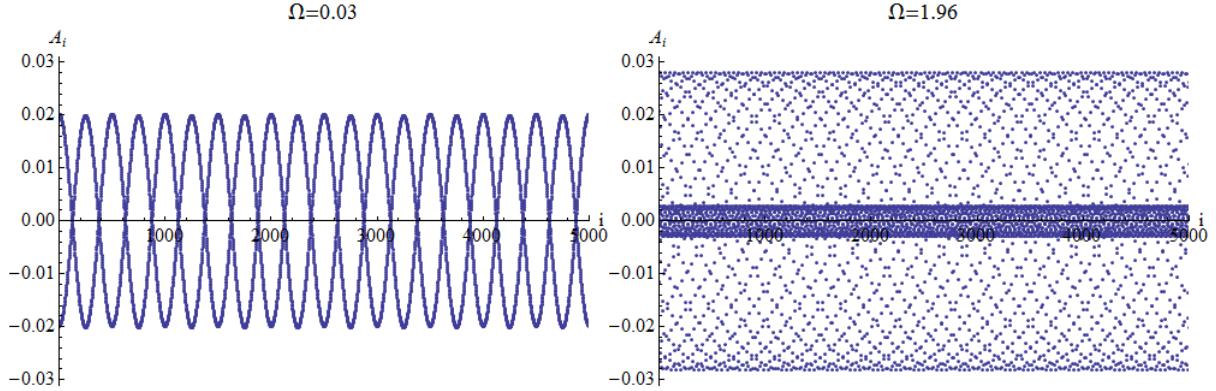
Pričakovati je časovno periodično odvisnost vzbuditev, zato je smiseln nastavek:  $S_i^+ = A_i e^{i\Omega\tilde{t}}$ , kjer  $\Omega$  predstavlja brezdimenzijsko frekvenco,  $\Omega = JS\omega$ .

Rešujemo torej sistem  $N$  enačb oblike,

$$\begin{aligned} \Omega A_{2i} &= A_{2i-1} c_{2i-1} + A_{2i} (c_{2i-1} + c_{2i}) + A_{2i+1} c_{2i} + A_{2i} b_{2i}, \\ \Omega A_{2i+1} &= -(A_{2i} c_{2i} + A_{2i+1} (c_{2i+1} + c_{2i}) + A_{2i+2} c_{2i+1}) + A_{2i+1} b_{2i+1}, \end{aligned} \quad (4.3.4)$$

kjer se upoštevajo periodični robni pogoji,  $A_1 = A_N$ . Izbrano število delcev je  $N = 5000$ .

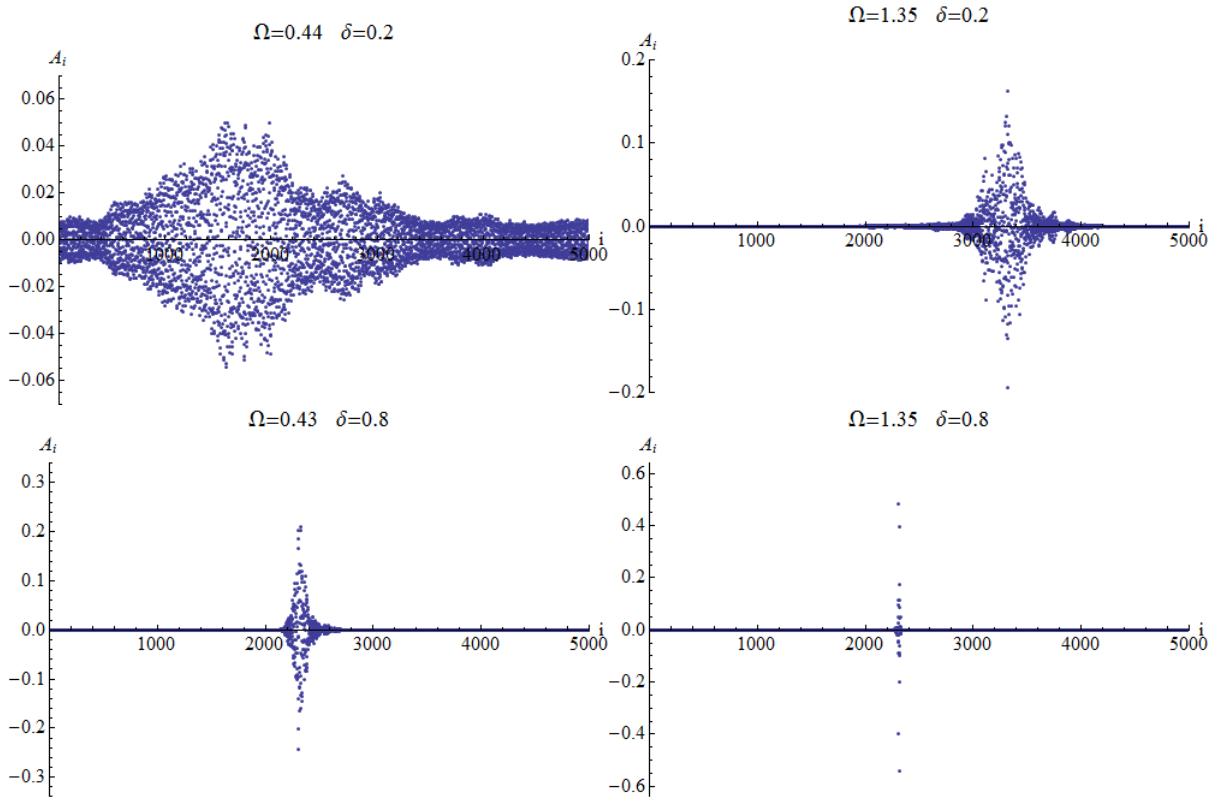
Poseben primer je sistem z  $\delta = 0$  (homogena veriga), kjer se kot rešitve pojavitjo ravni valovi. Zaradi omejenega sistema in periodičnih robnih pogojev mora veljati:  $kNa = 2\pi m$ , kar vodi do diskretnih vrednosti valovnega vektorja  $k_m = 2\pi m/Na$ . Posledično so tudi lastne frekvence lahko zgodlj  $\Omega_m = 2 \sin(k_m a) = 2 \sin(2\pi m/N)$ , pri čemer je  $\Omega$  omejena z  $\Omega_{max} = 2$ ,  $k$  pa z  $k_{max} = \pi/2a$ . Tako lahko preverimo pravilnost diagonalizacije matrike sistema enačb 4.3.4 (slika 10).



Slika 10: Dva lastna vektorja pri različnih frekvencah za urejen antiferomagnet. Vzbu- ditve se pojavljajo po vsem prostoru.

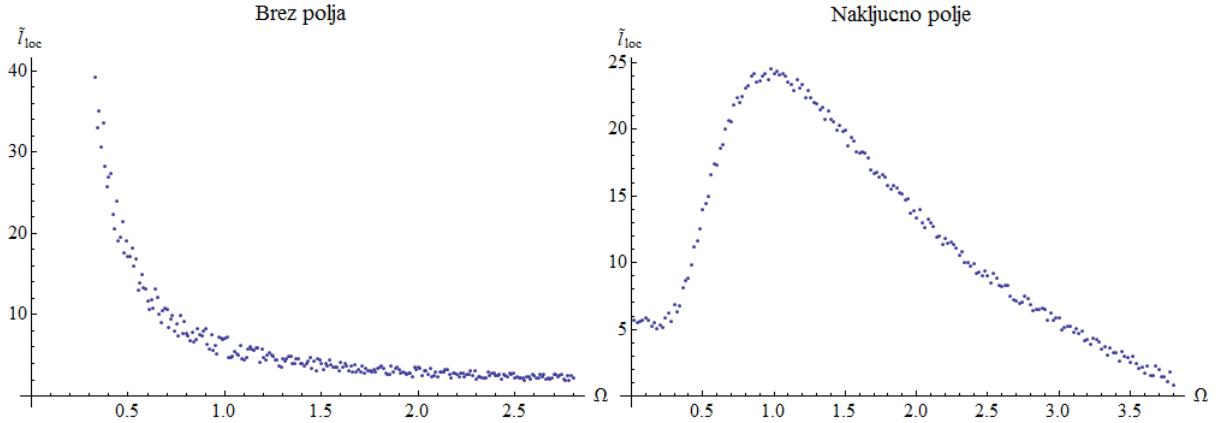
Bolj zanimivo in nenavadno je seveda obnašanje vzbuditev v primeru neurejenega antiferomagneta, kjer se, zaradi nereda po diagonali in izven diagonale matrike sistema enačb (4.3.4), pojavijo lokalizirane vzbuditve. Za njih je značilen eksponenten upad jakosti ob povečevanju razdalje od centra eksitacije  $|A_i| \propto |A_i| \exp[-|I - i|/\tilde{l}_{loc}]$ , kjer je  $I$  mesto z največjo jakostjo vzbuditve  $S^+$ ,  $\tilde{l}_{loc}$  pa brezdimenzijska lokalizacijska dolžina,  $\tilde{l}_{loc} = l_{loc}/a$ . Lokalizacijska dolžina tako predstavlja razdaljo, na kateri moč vzbuditve upade za  $1/e$ .

Hkrati je tudi pri lokaliziranih vzbuditvah prisotno valovanje  $\exp[ika]$ , a valovni vektor  $k$  tokrat ni popolnoma določen pri neki frekvenci  $\Omega$ .



Slika 11: Lokalizirane vzbuditve za različne lastne frekvence  $\Omega$  in nereda  $\delta = 0.8$  ter  $\delta = 0.2$ . Opaziti je mogoče zmanjšanje lokalizacijske dolžine  $l_{loc}$  z večanjem frekvence in nereda.

Lokalizirane vzbuditve so tako omejene z lokalizacijsko dolžino  $l_{loc}$ . Le-ta je močno odvisna od lastne frekvence in moči nereda (slika 11). Pri nižjih vzbuditvah je lokalizacija vedno šibkejša, nedoločenost valovnega vektorja pa vedno manjša (slika 13). Preučevanje lokalizacijske dolžine za različne vrednosti frekvence vzbuditev kaže na divergenco pri  $\Omega = 0$  (slika 12 levo), kjer je pričakovati nelokalizirano stanje, morda tudi pri nizkih, a neničelnih frekvencah. Pojav divergence  $l_{loc}$  je bil raziskan že v [28].



Slika 12: Odvisnost lokalizacijske dolžine  $\tilde{l}_{loc}$  od frekvence  $\Omega$  za  $\delta = 0.8$ . V točki  $\Omega = 0$ ,  $\tilde{l}_{loc}$  divergira. Desno je dodan še primer odvisnosti lokalizacijske dolžine v naključnem polju, enakomerno porazdeljenem po intervalu,  $1 - w \leq b_i \leq 1 + w$ ,  $w = 0.1$ , kjer divergencia izgine.

Divergenca lokalizacijske dolžine se izniči v primeru dodanega poljubno majhnega diagonalnega nereda, denimo postavitev sistema v prostorsko naključno zunanje polje  $b_i$  ali pa tudi izmenjujoče polje  $b_i^z = (-1)^i$ . Na sliki 12 desno je prikazan primer za naključno polje, ki je enakomerno porazdeljeno kot,

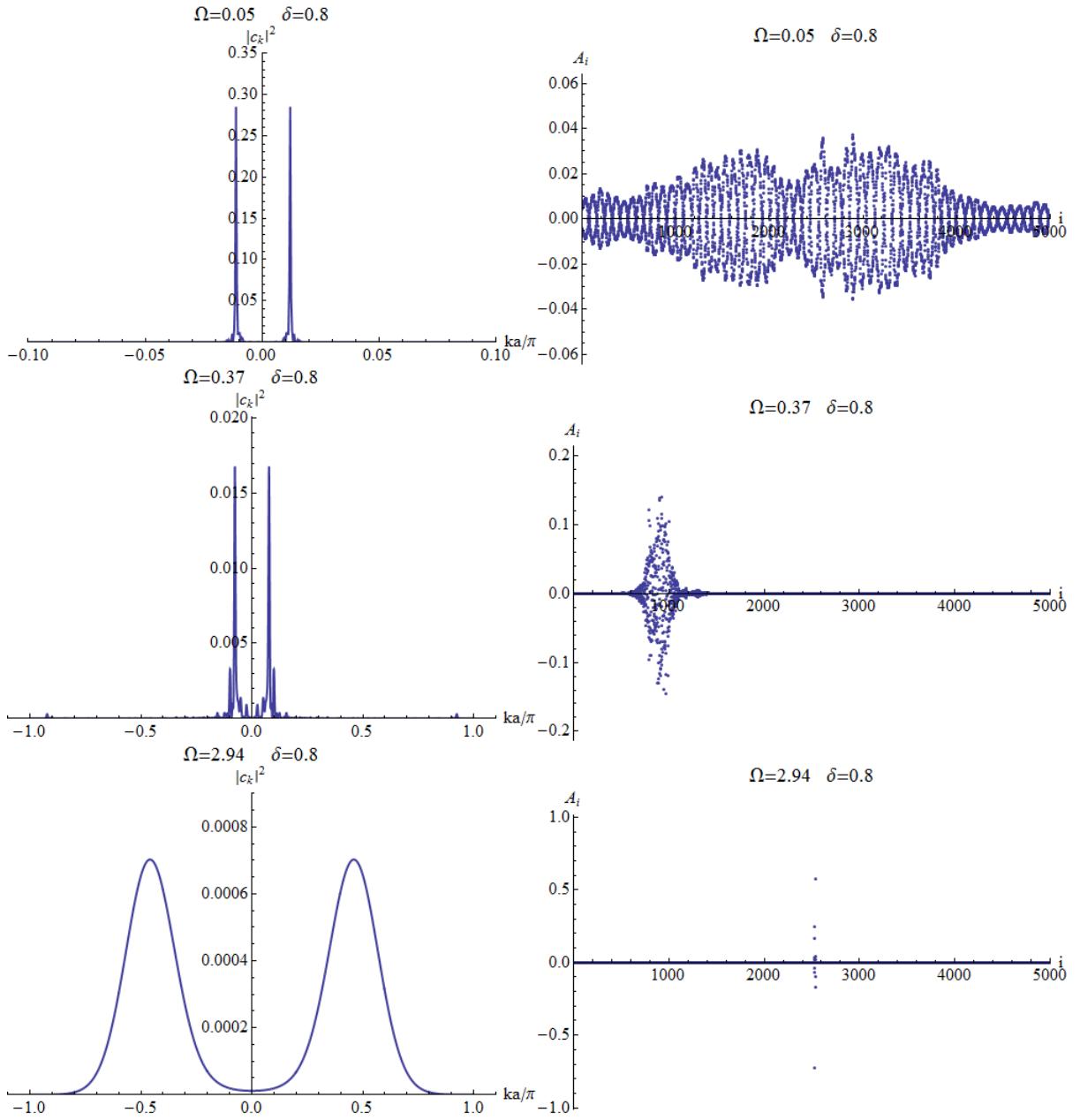
$$1 - w \leq b_i^z \leq 1 + w, \quad (4.3.5)$$

kjer je nered  $w$  enak 0.1.

Vzbuditev na mestu  $j$  je mogoče zapisati tudi kot,

$$A_j = \sum_k c_k e^{ikaj}. \quad (4.3.6)$$

Z inverzno Fourierovo transformacijo tako lahko dobimo velikost vzbuditev v  $k$  sliki, ki jo merimo z velikostjo kompleksnega števila  $c_k$ ,  $|c_k|^2$ . Za bolj lokalizirane vzbuditve velja, da imajo valovni vektor  $k$  porazdeljen precej širše. Inverz Fourierove transformacije nelokaliziranih vzbuditev, ravnih valov, je tako delta funkcija  $|c_k|^2 = \delta(k - k_p)$ , kjer je  $k_p$  valovni vektor vzbuditve, medtem ko inverzna Fourierova transformacija lokaliziranih vzbuditev da precej širšo  $k$ - sliko.



Slika 13: Kvadrat Fourierove transformiranke (levo) in ustrezajoča vzbuditev pri določeni frekvenci (desno) za  $\delta = 0.8$ . Zgornji primer kaže šibko lokalizirano vzbuditev ( $\Omega = 0.05$ ) z ostrom spektrom valovnega vektorja, medtem ko je v spodnjem primeru vzbuditev močno lokalizirana, spekter pa širok.

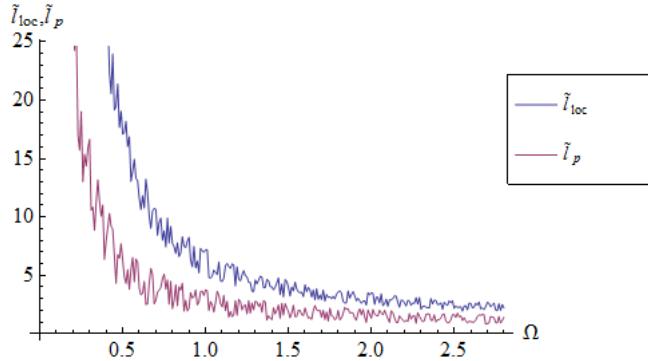
Slika 13 kaže nekaj primerov Fourierovih transformirank za določene lastne vektorje ( $\delta = 0.8$ ). Potrebno je poudariti, da je zaradi antiferomagnetne ureditve, kjer so sosednje vzbuditve nasprotnega predznaka,  $k$ -slika vzbuditev soda funkcija, torej  $c_k = c_{-k}$ .

Pri zelo nizkih frekvencah, kjer so vzbuditve tudi pri visokem neredu slabo lokalizirane, je pripadajoča  $k$ -slika blizu delta funkciji, kot je to v primeru ravnih valov, ki so rešitve urejenega sistema. Po drugi strani pa je močno lokalizirane vzbuditve pri visokih frekvencah značilen širok vrh valovnega vektorja z obliko Gaussove funkcije.

Nedoločenost valovnega vektorja je s povprečno prosto potjo vzbuditve povezana kot,

$$l_p = \frac{1}{\Delta k}, \quad (4.3.7)$$

kjer  $\Delta k$  predstavlja širino vrha.



Slika 14: Primerjava povprečne prosti poti vzbuditve in lokalizacijske dolžine v odvisnosti od frekvence pri  $\delta = 0.8$ .

Na sliki 14 je prikazana primerjava povprečne proste poti  $L_p$  in lokalizacijske dolžine vzbuditve  $l_{loc}$ . Opaziti je mogoče, da je  $l_p$  omejena z vrednostjo  $l_{loc}$ .

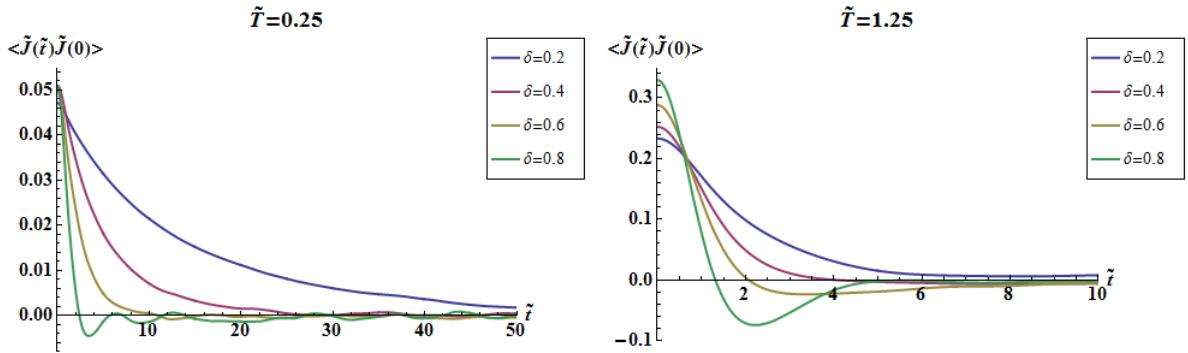
## 4.4 Toplotna in spinska prevodnost neurejenih sistemov

### 4.4.1 Korelacijske funkcije toplotnega toka

Toplotna prevodnost je, poleg trivialnega člena  $T^2$ , odvisna zgolj od korelacijske funkcije toplotnega toka  $J^E = \sum_i j_i^E$ . Z numerično integracijo gibalne enačbe (en. 4.1.10) in povprečenjem prek začetnih stanj, izračunan  $J^E(t)$  nato korelacijsko funkcijo določa kot,

$$\langle J^E(t) J^E(0) \rangle = \int_0^\infty J^E(t+t') J^E(t') dt'. \quad (4.4.1)$$

Oblika korelacijske funkcije je močno odvisna od temperature in nereda v sistemu (slika 15).



Slika 15: Korelacijski funkciji topotnega toka za različne nerede pri brezdimenzijski temperaturi  $\tilde{T} = 0.25$  (levo) in  $\tilde{T} = 1.25$  (desno) v odvisnosti od brezdimenzijskega časa  $\tilde{t} = tJS$ .

Na sliki 15 sta prikazani časovni odvisnosti korelacijske funkcije za različne velikosti nereda  $\delta$  za nižje in višje temperature. Nad temperaturami  $\tilde{T} = 1$  je odvisnost korelacijske funkcije praktično neodvisna od temperature. Velja,

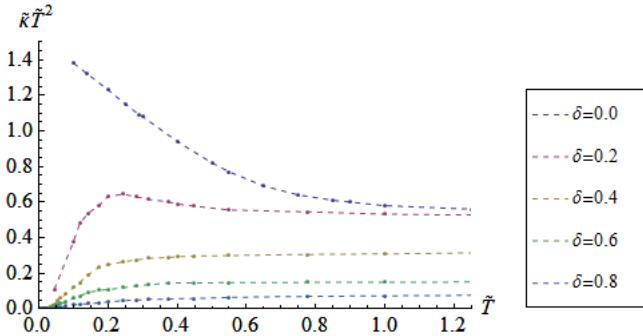
$$\frac{\partial \left\langle \tilde{J}^E(\tilde{t})\tilde{J}^E(0) \right\rangle}{\partial \tilde{t}}|_{\tilde{t}=0} = 0. \quad (4.4.2)$$

Relaksacijski čas funkcije  $\langle \tilde{J}^E(\tilde{t})\tilde{J}^E(0) \rangle$  definiramo kot čas  $\tau$ , po katerem funkcija pada na vrednost  $\langle J^E(0)^2 \rangle e^{-1}$ . Relaksacijski čas je mogoče povezati s časom  $\tau$  predstavljenim v poglavju o kinetični teoriji, ki je s prosto potjo povezan kot:  $l_p = v\tau$ . Opaziti je mogoče, da je pri nižjih temperaturah  $\tau$  močno odvisen od nereda. Z višanjem le-tega se relaksacijski čas hitro zmanjšuje, kar je mogoče razložiti s sipanjem magnonov zaradi neurejenih sklopitev.

V prejšnjem poglavju sem pokazal, da so nizkotemperaturne vzbuditve pri neurejenih sistemih lokalizirane in se ne pojavijo v celotnem prostoru (verigi). Takšen pojav lokalizacije ima močan vpliv na prevodnost sistema. Pri nizkih temperaturah je tako mogoče pričakovati, da sistem ne bo prevajal topote. Slednje se kaže v tem, da relaksacijski čas korelacijske funkcije,  $\tau$ , pri nižanju temperature ne narašča, pač pa celo pada.

Pri višjih temperaturah je efektivna vrednost  $\tau$  za vse nerede zelo podobna (slika 15 desno). Po drugi strani pa tu pri višanju nereda korelacijska funkcija zaide vedno bolj v negativno področje. Slednje pomeni, da skupni topotni tok po določenem času začne teči v nasprotno smer kot ob času 0.

Integral v Green-Kubo formuli tako tudi pri višjih temperaturah ni enak za različne nerede (slika 16).



Slika 16: Odvisnost  $\tilde{\kappa}\tilde{T}^2$  za  $\delta = 0.0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ . Pri visokih temperaturah vrednost korelacijske funkcije za više nerede ob določenem času zaide v negativno področje (slika 15) in tako  $\tilde{\kappa}\tilde{T}^2$  kljub enakim korelacijskim časom ne gre proti isti vrednosti za vsak nered.

Opaziti je mogoče, da je integral korelacijske funkcije (sorazmeren s  $\tilde{\kappa}\tilde{T}^2$ ) pri temperaturah nad  $\tilde{T} = 1$  konstanten in zaradi konvergencije korelacijske funkcije pri vseh temperaturah in neredih vselej končen. Vseeno pa je različen za vsako vrednost nereda  $\delta$ . Primer z  $\delta = 0.2$  je nekoliko drugačen, saj se efekti neurejenih sklopitev v sistemu pričnejo poznati šele pri nižjih temperaturah (pri višjih pa so transportni pojavi enaki kot v urejenem sistemu), medtem ko je vpliv nečistoč pri ostalih vrednostih  $\delta = 0.4, 0.6, 0.8$  opazen na vsej temperaturni skali.

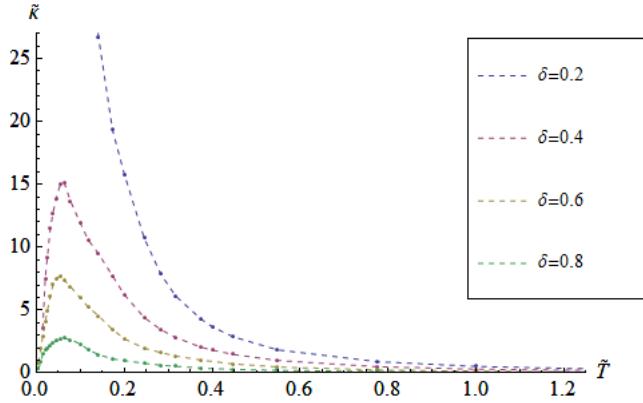
Posebej zanimiva je vrednost integrala korelacijske funkcije v limiti nizkih temperatur. V urejenem sistemu empirična formula iz [9]  $\tilde{\kappa}\tilde{T}^2 = 0.56 + 0.9\text{Exp}[-3.8\tilde{T}^{1.6}]$  namiguje, da je vrednost integrala pri  $T = 0$  končna in različna od nič. Vseeno pa je rezultat pri zelo nizkih temperaturah zaradi eksponentno naraščajočega relaksacijskega časa  $\tau$  (v primeru  $\delta = 0$ ) ob približevanju  $T = 0$  zelo težko natančno izračunati dani integral.

V primeru neurejenih sistemov velja  $\lim_{T \rightarrow 0} \kappa T^2 = 0$ , kajti relaksacijski čas  $\tau$  se pri nizkih temperaturah, v nasprotju z urejenim sistemom, ne povečuje, medtem ko je povprečen kvadrat toplotnega toka z nižanjem temperature vedno manjši. Očitno je, da slednje še ne pomeni ničelne vrednosti  $\kappa$  pri  $T = 0$ . Če za vrednost  $\kappa T^2$  velja, da je njena odvisnost pri  $T = 0$  sorazmerna s  $T^r$ , obstajajo trije mejni primeri:

$$\begin{aligned} r < 2 &\rightarrow \kappa \text{ divergira} \\ r = 2 &\rightarrow \kappa \text{ je konstantna} . \\ r > 2 &\rightarrow \kappa \text{ gre proti } 0 \end{aligned} \tag{4.4.3}$$

#### 4.4.2 Temperaturna odvisnost toplotne prevodnosti in povprečna prosta pot

Odvisnost  $\tilde{\kappa}(\tilde{T})$  je prikazana na sliki 16.



Slika 17:  $\tilde{\kappa}(\tilde{T})$  za nerede  $\delta = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ .

Že iz temperaturne odvisnosti integrala korelacijske funkcije na sliki 16 je mogoče ugotoviti, da v limiti visokih temperatur velja  $\kappa \propto T^{-2}$ , saj je vrednost integrala korelacijske funkcije konstantna nad  $\tilde{T} \sim 1$ .

Limita nizkih temperatur se izkaže za bolj zanimivo. Iz slike 16 je opazno, da je obnašanje  $\kappa$  močno odvisno od vrednosti  $\delta$ . Po eni strani prispevek sipanja na nečistočah močno vpliva na velikostno skalo toplotne prevodnosti, kar se da razbrati že iz integrala korelacijske funkcije, hkrati pa je opazna tudi divergenca  $\kappa$  za  $\delta = 0.2$ , kar je drugače kot pri ostalih, višjih, neredih. Divergenca je morda zgolj navidezna, saj je pri nižjih neredih mnogo težje natančno izračunati korelacijsko funkcijo toplotnega toka, ki pojema precej počasneje in tako za  $\delta = 0.2$  najnižje temperature niso bile obravnavane. Kljub vseemu pa je velikostni preskok integrala korelacijske funkcije med  $\delta = 0.4$  in  $\delta = 0.2$  precej večji kot ostali preskoki, kar namiguje, da bi integral korelacijske funkcije  $\langle J^E(t)J^E(0) \rangle$  za  $\delta = 0.2$  v bližini  $T \rightarrow 0$  lahko naraščala počasneje kot  $\propto T^2$ , torej vrednost toplotne prevodnosti ne bi bila enaka 0. V primeru višjih neredov resnično velja pričakovani rezultat  $\lim_{T \rightarrow 0} \kappa(T) = 0$ .

Na toplotno prevodnost vpliva predvsem povprečna prosta pot vzbuditev, ki je s  $\kappa$  povezana po enačbi,

$$\kappa = c_V l_p v. \quad (4.4.4)$$

Specifično toploto klasičnega sistema je mogoče izračunati kot,

$$c_V = \frac{1}{V} \frac{\partial \langle E \rangle}{\partial T} = \frac{1}{V} \frac{1}{k_B T^2} (\langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2), \quad (4.4.5)$$

ali v brezdimenzijski obliki,

$$\tilde{c}_V = c_V \frac{a}{k_B} = \frac{1}{N} \frac{\partial \langle \tilde{E} \rangle}{\partial \tilde{T}} = \frac{1}{N \tilde{T}} \left( \langle \tilde{E}^2 \rangle - \langle \tilde{E} \rangle^2 \right). \quad (4.4.6)$$

Za povprečno vrednost energije  $\langle E \rangle$  velja,

$$\langle E(T) \rangle = -\frac{\partial \ln Z}{\partial \beta}, \quad (4.4.7)$$

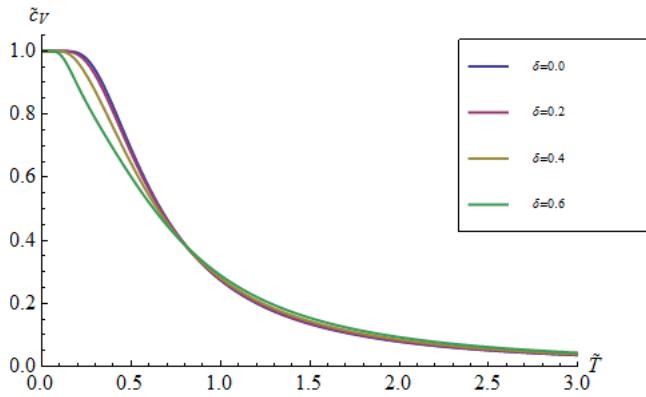
kjer je  $Z$  statistična vsota, ki zajema energije vseh impulzov  $\mathbf{q}_i$ ,

$$Z = \int e^{-\beta E(\mathbf{q}_1, \dots, \mathbf{q}_N)} d\mathbf{q}_1 d\mathbf{q}_2 \dots d\mathbf{q}_N. \quad (4.4.8)$$

Za povprečno vrednost energije tako velja,

$$\langle E(T) \rangle = \frac{\int E(\mathbf{S}_1, \mathbf{S}_2, \dots, \mathbf{S}_N) e^{-\beta E(\mathbf{S}_1, \mathbf{S}_2, \dots, \mathbf{S}_N)} d\mathbf{S}_1 d\mathbf{S}_2 \dots d\mathbf{S}_N}{\int e^{-\beta E(\mathbf{S}_1, \mathbf{S}_2, \dots, \mathbf{S}_N)} d\mathbf{S}_1 d\mathbf{S}_2 \dots d\mathbf{S}_N}, \quad (4.4.9)$$

kjer se vektorje  $\mathbf{S}_i$  integrira po sferi s središčem v  $(0,0,0)$  in polmerom  $S$ .

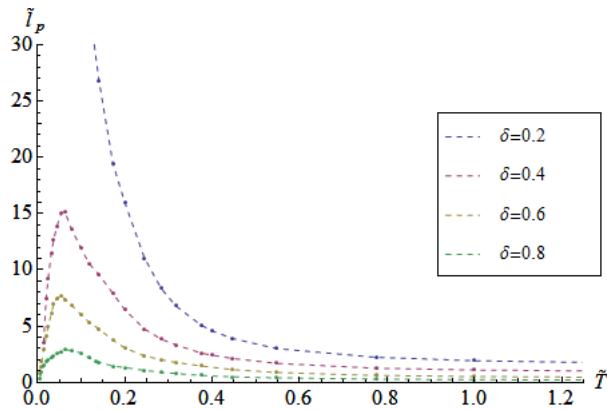


Slika 18: Specifična toplota  $\tilde{c}_V$  antiferomagneta za različne nerede.

Specifična toplota klasičnega Heisenbergovega modela se od kvantne razlikuje predvsem po obnašanju pri nizkih temperaturah. V kvantnem 1D antiferomagnetu je pričakovati odvisnost  $c_V \propto T$  pri nizkih temperaturah, medtem ko je specifična toplota klasičnih spinskih verig pri nizkih temperaturah konstantna z vrednostjo  $k_B/a (= 1)$ . Vpliv specifične toplotne pri nizkih temperaturah tako na tem temperaturnem območju nima vpliva na prosto pot. Začetek pojemanja  $c_V$  je močno odvisen od  $\delta$ . V urejenem sistemu začne  $c_V$  pojemati pri  $\tilde{T} \sim 0.4$ , medtem ko se pri višjih  $\delta$  ta upad zgodi pri nižjih  $\tilde{T}$ . V limiti visokih temperatur pa velja  $\tilde{c}_V \sim \frac{1}{3}\tilde{T}^{-2}$  za urejen sistem, medtem ko so prefaktorji pri višjih neredih nekoliko večji.

Grupno hitrost vzbuditev je v limiti dolgih valovnih dolžin mogoče določiti preprosto kot  $v = \frac{\partial \omega}{\partial k}|_{k \rightarrow 0}$ . Iz disperzijske zveze magnonov za urejen antiferomagnet sledi  $v \sim JS$ .

Povprečna prosta pot magnonov je prikazana na sliki 19.

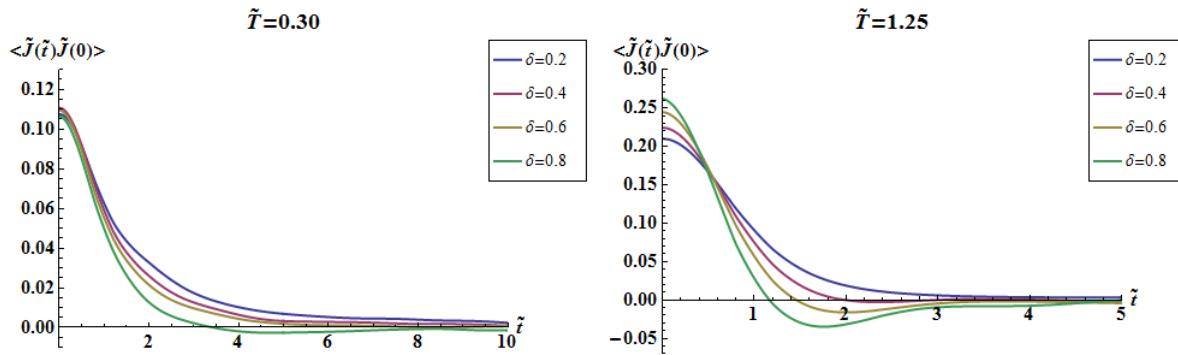


Slika 19: Temperaturna odvisnost  $\tilde{l}_p$  za različne vrednosti  $\delta$ .

Odvisnost  $l_p$  pri nizkih temperaturah je seveda podobna kot odvisnost  $\kappa(T)$ . Širina vrha je večja zgolj pri najvišjih neredih ( $\delta = 0.6, 0.8$ ), saj je drugood vrednost  $c_V$  pri relevantnih temperaturah konstantna. Povprečna prosta pot spinonov z višanjem temperature limitira proti končni vrednosti, saj tako  $\kappa$  kot tudi  $c_V$  pojema z  $T^{-2}$ . Za majhne vrednosti  $\delta$  ( $\delta < 0.3$ ) velja,  $\tilde{l}_p(\tilde{T} = \infty) = 0.56\tilde{T}^{-2}/\frac{1}{3}\tilde{T}^{-2} = 1.68$ .

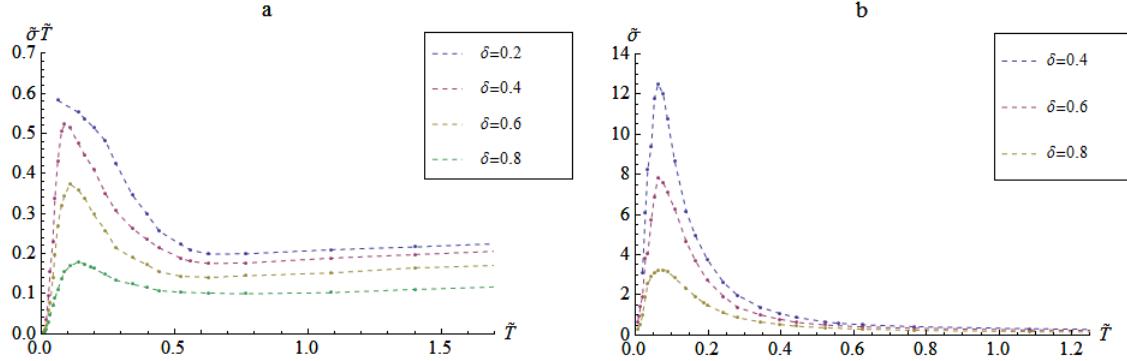
#### 4.4.3 Spinska prevodnost

Korelacijske funkcije spinskega toka so podobne korelacijskim funkcijam toplotnega toka in pojema eksponentno s časom. Slika 20 prikazuje nekaj primerov korelacijskih funkcij za različne nerede pri nižjih in višjih temperaturah.



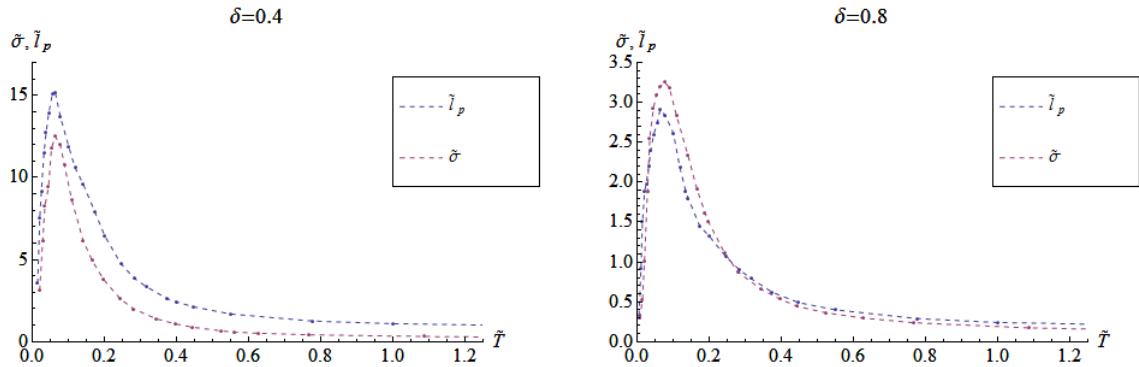
Slika 20: Korelacijski funkciji spinskega toka za  $\tilde{T} = 0.30$  (levo) in  $\tilde{T} = 1.25$  (desno).

V skladu z Green-Kubo formulo za spinsko prevodnost (en. 4.2.3), je  $\sigma$  odvisna od integrala korelacijske funkcije spinskega toka in trivialnega člena  $T^{-1}$ .



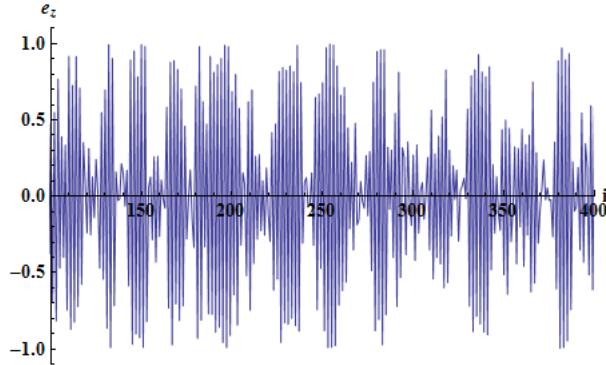
Slika 21: Odvisnost integrala spinske korelacijske funkcije (levo) in spinske prevodnosti (desno) od temperature.

Slika 21a prikazuje odvisnost integrala korelacijske funkcije  $\langle \tilde{J}^S(\tilde{T})\tilde{J}^S(0) \rangle$ . Opaziti je mogoče precej drugačno odvisnost kot pri korelacijski funkciji toplotnega toka. Ustrezajoča odvisnost spinske prevodnosti je prikazana na sliki 21b. Vrh funkcije  $\tilde{\sigma}(\tilde{T})$  se ujema z vrhovoma funkcij  $\tilde{\kappa}(\tilde{T})$  in  $\tilde{l}_p(\tilde{T})$  (sliki 17 in 19) in se nahaja pri  $\tilde{T} \approx 0.07$ . Predvsem zanimiva je primerjava s temperaturno odvisnostjo povprečne proste poti. Po Drudejevem modelu je mogoče oceniti (en. 2.2.4)  $\sigma \propto \tau \propto l_p$ . Primerjava za dve vrednosti  $\delta$  je prikazana na sliki 22. Očitno je, da spinska prevodnost in povprečna prosta pot ne bosta ves čas sorazmerni, saj prosta pot konvergira h končni vrednosti, za  $\sigma$  pa velja, da k vrednosti nič konvergira kot  $T^{-1}$ . Vseeno pa je podobnost (vrh, širina vrha) mogoče opaziti.



Slika 22: Primerjava temperaturne odvisnosti  $\tilde{\sigma}(\tilde{T})$  in  $\tilde{l}_p(\tilde{T})$  za  $\delta = 0.4$  in  $\delta = 0.8$ .

Pojav lokalizacije očitno resnično vodi do precejšnjega upada tako toplotne, kot tudi spinske prevodnosti pri nizkih temperaturah. Opaziti pa je mogoče predvsem prese netljivo nizko temperaturno skalo, pri kateri vpliv lokalizacije deluje. Izkaže se, da približek linearnih stanj zelo hitro preneha veljati, saj se spini klasične verige že pri zelo nizkih temperaturah ( $\tilde{T} \sim 0.1$ ) pričnejo zvijati in pojavljati se začnejo domenske stene (slika 23) posledično pa za  $z$  komponento ne velja več  $S_i^z \sim (-1)^i S$ .



Slika 23: Zvijanje spinov v verigi pri  $\tilde{T} = 0.1$  na 300 delcev dolgem odseku verige.  $z$  komponente spina so med seboj povezane zaradi večje preglednosti. Opazne so sinusoidne oscilacije, ki namigujejo na to, da se spini zvijajo in nastajajo domenske stene.

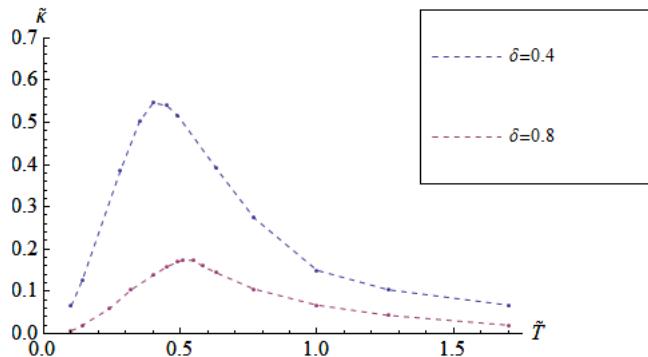
## 4.5 Antiferomagnetna veriga v izmenjujočem polju

Vpliv lokalizacije je mogoče lažje preučiti v primeru zunanjega izmenjujočega polja v  $z$  smeri:  $\mathbf{b}_i = (0, 0, (-1)^i b)$ . Takšno polje (v simulacijah  $b = 1$ ) bo spinske vektorje obdržalo v bližini osi  $z$  tudi pri precej višjih temperaturah in tako bodo v tem temperaturnem območju v antiferomagnetu prisotne zgolj elementarne vzbuditve-magnoni. Z zunanjim poljem je tako mogoče preveriti, ali sistem resnično ni prevoden pod določeno temperaturo. V odsotnosti polja se takša temperatura pojavi tako nizko, da se je mogoče upravičeno vprašati, ali ni ničelna prevodnost posledica končno velikega sistema, oziroma prekratkega časovnega povprečevanja glede na počasno dinamiko pri nizkih temperaturah.

V zunanjem polju se izrazu za toplotni tok v odsotnosti polja prišteje še dodatni člen,

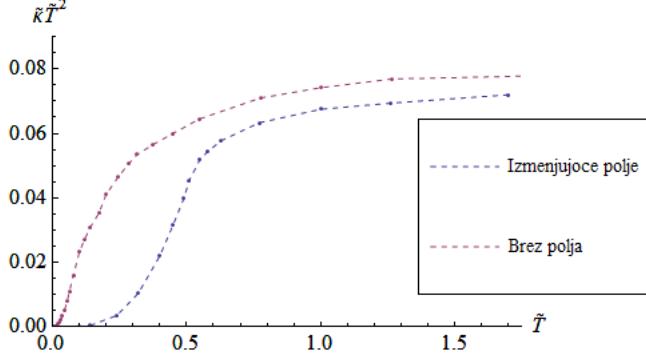
$$\tilde{j}_i^{E b} = -\frac{1}{2} c_{i-1} (\mathbf{e}_{i-1} \times \mathbf{e}_i) \cdot (b_{i-1} \mathbf{b}_{i-1} + b_i \mathbf{b}_i), \quad (4.5.1)$$

ki pa ima v primeru izmenjujočega polja vrednost 0 in tako toplotni tok ostane enak kot toplotni tok v odsotnosti zunanjega polja.



Slika 24: Toplotna prevodnost  $\tilde{\kappa}(\tilde{T})$  za neurejeno verigo v zunanjem izmenjujočem polju  $b_i^z = (-1)^i$  pri neredih  $\delta = 0.4$  in  $\delta = 0.8$ .

Na sliki 24 je prikazana odvisnost toplotne prevodnosti  $\tilde{\kappa}(\tilde{T})$  v izmenjujočem polju. Očiten je premik temperaturne skale, saj se sedaj vrhovi funkcije  $\tilde{\kappa}(\tilde{T})$  pojavijo pri  $\tilde{T} \sim 0.5$ , do koder imajo lokalizirana stanja še vpliv. Vpliv le-teh je jasnoviden na sliki 25, ki kaže primerjavo temperaturne odvisnosti integralov korelacijske funkcije toplotnega toka za sistem z zunanjim poljem in brez njega.



Slika 25: Primerjava integrala korelacijske funkcije toka ( $= \tilde{\kappa}\tilde{T}^2$ ) brez polja in v izmenjujočem polju za neurejeno verigo z  $\delta = 0.8$ . Pri nizkih temperaturah lokalizacija močno vpliva na vrednost toplotne prevodnosti, pri višjih pa gredo integrali korelacijskih funkcij proti isti vrednosti.

Potrebitno je omeniti, da zunanje, izmenjujoče polje ne povzroči zgolj premika temperaturne skale, pač pa močno razširi temperaturno območje, ki ga lahko imenujemo "nizkotemperaturno", kjer je sistem blizu osnovnega stanja. Po drugi strani pa je nato prehod k višjim temperaturam precej hitrejši kot ob odsotnosti zunanjega polja. Temperatura prehoda pa je kljub temu odvisna od velikosti  $B$ . V limiti visokih temperatur sta vrednosti prevodnosti, razumljivo, enaki.

## 4.6 Limita visokih temperatur

Vrednost toplotne in spinske prevodnosti za poljubni nered je pri visokih temperaturah mogoče izračunati tudi analitično. V limiti  $\beta \rightarrow 0$  bodo verjetnostne uteži za določeno konfiguracijo spinov z energijo  $E(\mathbf{S}_1, \dots, \mathbf{S}_n)$ ,  $P \propto e^{-\beta E(\mathbf{S}_1, \dots, \mathbf{S}_n)}$ , enake za vsako konfiguracijo. Tako bo usmeritev trodimenzionalnih vektorjev, ki predstavljajo spine v klasičnem modelu, popolnoma naključna.

Za povprečni kvadrat spinskega toka  $\langle (\tilde{J}^S)^2 \rangle$ , ki hkrati predstavlja tudi korelacijsko funkcijo ob času  $\tilde{t} = 0$ , velja ,

$$\langle (\tilde{J}^S)^2 \rangle = \frac{1}{N} \left\langle \left[ \sum_j^N c_j (e_j^x e_{j+1}^y - e_j^y e_{j+1}^x) \right]^2 \right\rangle = \left\langle c_i^2 (e_i^x e_{i+1}^y - e_i^y e_{i+1}^x)^2 \right\rangle. \quad (4.6.1)$$

Upoštevamo:  $\mathbf{e}_i = (\sin\theta_i \cos\varphi_i, \sin\theta_i \sin\varphi_i, \cos\theta_i)$ , pri čemer je usmeritev vektorja enakomerno porazdeljena po prostorskem kotu in na preprost način je mogoče pokazati, da velja,

$$\langle c_i^2 \rangle = 1 + \frac{\delta^2}{3}, \quad (4.6.2)$$

$$\left\langle (e_i^x e_{i+1}^y - e_i^y e_{i+1}^x)^2 \right\rangle = \frac{2}{9}. \quad (4.6.3)$$

Posledično je povprečni kvadrat spinskega toka enak,

$$\left\langle (\tilde{J}^S)^2 \right\rangle = \frac{2}{9} \left( 1 + \frac{\delta^2}{3} \right). \quad (4.6.4)$$

V primeru zunanjega polja bo rezultat enak, saj se prispevek polja k spinskemu in tudi energijskemu toku izpovpreči.

Podoben razmislek je mogoče uporabiti tudi pri izračunu povprečnega energijskega toka  $\langle (\tilde{J}^E)^2 \rangle$ , za katerega velja,

$$\left\langle (\tilde{J}^E)^2 \right\rangle = \frac{1}{N} \left\langle \left( \sum_i^N c_{i-1} c_{i-2} (\mathbf{e}_{i-2} \times \mathbf{e}_{i-1}) \cdot \mathbf{e}_i \right)^2 \right\rangle = \left\langle [c_{i-1} c_{i-2} (\mathbf{e}_{i-2} \times \mathbf{e}_{i-1}) \cdot \mathbf{e}_i]^2 \right\rangle. \quad (4.6.5)$$

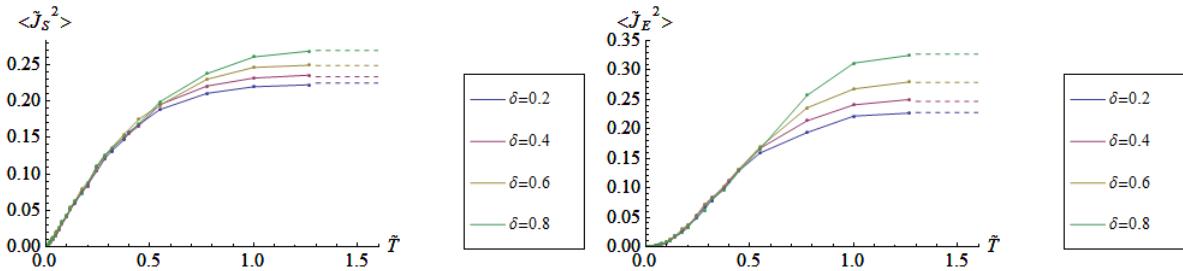
Upoštevaje,

$$\left\langle [(\mathbf{e}_{i-2} \times \mathbf{e}_{i-1}) \cdot \mathbf{e}_i]^2 \right\rangle = \frac{2}{9}, \quad (4.6.6)$$

$$\left\langle (c_{i-1} c_i)^2 \right\rangle = 1 + \frac{2\delta^2}{3} + \frac{\delta^4}{9}, \quad (4.6.7)$$

je povprečni kvadrat spinskega toka,

$$\left\langle (\tilde{J}^E)^2 \right\rangle = \frac{2}{9} \left( 1 + \frac{2\delta^2}{3} + \frac{\delta^4}{9} \right). \quad (4.6.8)$$



Slika 26: Numerično izračunana povprečna kvadrata spinskega (zgoraj) in toplotnega (spodaj) toka, ter analitično izračunana vrednost v limiti visokih temperatur.

Na sliki 26 je mogoče opaziti dobro ujemanje numerično izračunanih kvadratov spinskega in toplotnega toka z analitično vrednostjo pri  $T \rightarrow \infty$ . Poleg tega, dokaj očitnega,

rezultata pa je z določenimi predpostavkami mogoče izračunati tudi potek korelacijskih funkcij in njihov integral v tej limiti visokih temperatur.

Korelacijsko funkcijo spinskega (ali toplotnega) toka  $\langle \tilde{J}^S(\tilde{t})\tilde{J}^S(0) \rangle = C(\tilde{t})$  je mogoče razviti v vrsto [29]:

$$\frac{C(\tilde{t})}{C(0)} = 1 + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(2n)!} M_{2n} \tilde{t}^{2n}, \quad (4.6.9)$$

kjer je  $M_{2n}$  sodi moment korelacijske funkcije, za katerega velja:

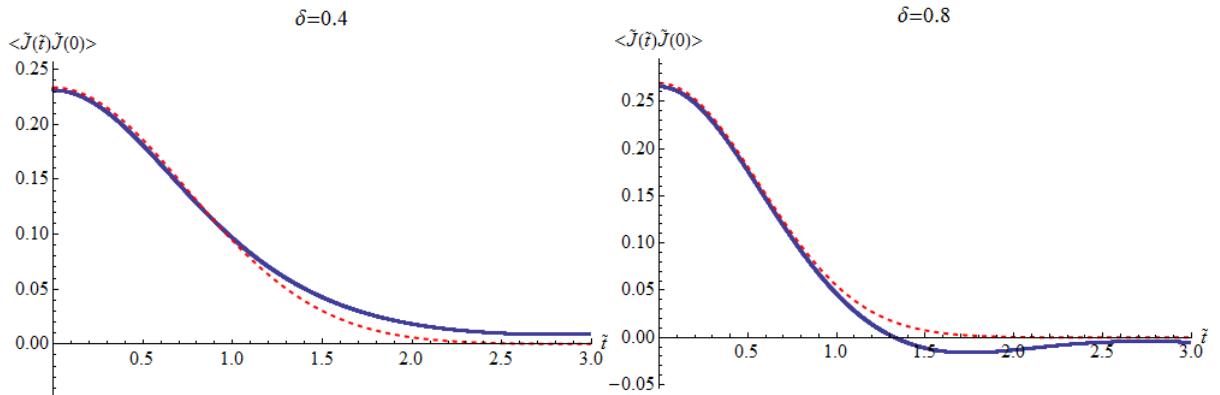
$$M_{2n} = (-1)^n \frac{d^{2n}}{d\tilde{t}^{2n}} C(\tilde{t}) |_{\tilde{t}=0} / C(0) = (-1)^n \left\langle \frac{d^{2n} \tilde{J}^S(\tilde{t})}{d\tilde{t}^{2n}} |_{\tilde{t}=0} \cdot \tilde{J}^S(0) \right\rangle / C(0). \quad (4.6.10)$$

Katerikoli odvod spinskega toka  $\tilde{J}^S = \sum_i c_i (e_i^x e_{i+1}^y - e_i^y e_{i+1}^x)$  je mogoče izračunati s pomočjo dinamične enačbe, ter nato s povprečenjem prek spinov ob času  $\tilde{t} = 0$  izračunati sode momente. Za korelacijsko funkcijo je pričakovati eksponentno padajočo obliko. Če za izračunana drugi in četrti moment velja:

$$\xi = \frac{M_4}{3M_2^2} \simeq 1, \quad (4.6.11)$$

je mogoče korelacijsko funkcijo aproksimirati z Gaussovo obliko, ki je odvisna zgolj od njenega drugega momenta:

$$C(\tilde{t}) = C(0) e^{-\frac{M_2}{2}\tilde{t}^2}. \quad (4.6.12)$$



Slika 27: Primerjava numerično izračunanih (modro) in analitično določenih (rdeče, črtkano) korelacijskih funkcij spinskega toka v limiti visokih temperatur za  $\delta = 0.4$  in  $\delta = 0.8$ .

V našem primeru je vrednost razmerja  $\xi$  resnično blizu 1. Slika 27 kaže primerjavo numerično izračunanih korelacijskih funkcij za spinski tok s približki Gaussove funkcije. V primeru  $\delta = 0.4$  je mogoče opaziti dobro ujemanje za vse čase, medtem ko je za

$\delta = 0.8$  ujemanje dobro zgolj na začetku, nato pa numerično določena korelacijska funkcija izgubi Gaussovo obliko, ter zaide v negativno področje.

Metoda povprečevanja tako da zelo podobne rezultate za integral korelacijske funkcije kot je numerično izračunan za nižje nerede, medtem ko je pri višjih neredih rezultat pri povprečevanju večji, kot pri numeričnem računanju (tabela 1), ker korelacijska funkcija v resnici ni povsem podobna Gaussovi.

	$\delta = 0.2$	$\delta = 0.4$	$\delta = 0.6$	$\delta = 0.8$
$\tau_{numerično}$	1.19	1.10	0.90	0.84
$\tau_{analitično}$	1.16	1.05	0.89	0.79
$\tilde{\sigma} \tilde{T}_{numerično}$	0.230	0.221	0.186	0.145
$\tilde{\sigma} \tilde{T}_{analitično}$	0.232	0.217	0.193	0.189

Tabela 1: Primerjava analitično izračunanih in numerično določenih vrednosti  $\tilde{\sigma} \tilde{T}$  in relaksacijskih časov  $\tau$  v limiti  $T \rightarrow \infty$ . Večje odstopanje je mogoče opaziti samo pri najvišjem neredu,  $\delta = 0.8$ .

## 5 Zaključek

Lastnosti spinske verige imajo pomemben vpliv na njeno prevodnost tako v klasičnih kot tudi kvantnih sistemih. V kvantnem primeru je pomemben predvsem spin verige, kjer so lastnosti sistema za polcelo spinsko število povsem drugačne kot lastnosti za cel spin. Pomembno vlogo igra tudi anizotropija sistema. V magistrski nalogi sem v obravnavanem klasičnem modelu pokazal, da ima velik vpliv na transportne koeficiente tudi nered skloplitvenih konstant  $J$ , ki je bodisi zaradi nečistoč, bodisi zaradi dopiranja prisoten tudi v pravih realizacijah kvantnih spinskih verig.

Močan vpliv nereda je mogoče pričakovati predvsem pri nizkih temperaturah, kjer je klasični antiferomagnet blizu njegovega osnovnega stanja. Zato sem v prvem delu z linearizacijo enačbe gibanja preveril lastnosti nizkotemperturnih vzbuditev sistema. Rezultati za urejeno verigo se ujemajo z analitično izračunanimi, saj imajo vzbuditve obliko ravnih valov z disperzijsko zvezo, ki opisuje magnone v čistem antiferomagnetu,  $\omega = 2JS \sin(ka)$ . Že majhen dodan nered pa povsem spremeni lastnosti osnovnih vzbujenih stanj, saj se le-ta pričnejo lokalizirati. Slednje pomeni, da se vzbuditev pojavi zgolj na nekem mestu na verigi, nato pa njena jakost vzdolž verige eksponentno pojema. Ker predstavljajo vzbuditve temeljni način toplotnega in spinskih transporta skozi verigo, je vpliv lokalizacije mogoče zaznati kot znatno zmanjšani toplotno in spinski prevodnost. Razsežnost vzbuditve nam opisuje lokalizacijska dolžina,  $l_{loc}$ , ki je odvisna od jakosti nereda, ter časovne frekvence vzbuditve. Z večjim neredom so vzbuditve pričakovano vse močneje lokalizirane. Drugače je pri frekvenčni odvisnosti, kjer  $l_{loc}$  z višanjem frekvence pada, ter ima obenem divergenco v točki  $\omega = 0$ . Nizkofrekvenčna stanja tako niso, ali pa so slabo lokalizirana. Slednje je mogoče odpraviti z dodanim zunanjim magnetnim poljem. V primeru homogenega polja, se vzbujena stanja zgolj zamaknejo in tako homogeno polje nima pomembnega vpliva. Če pa je zunanje polje naključno ali izmenjujoče, divergenca lokalizacijske dolžine izgine in vsa mogoča vzbujena stanja na spinski verigi postanejo lokalizirana.

V glavnem delu sem nato z numerično simulacijo preučil odvisnosti toplotne in spinski prevodnosti na vsej temperaturni skali. Z računanjem korelacijskih funkcij toplotnega in spinskih tokov, sem s pomočjo Green-Kubo formule lahko določil vrednost obeh prevodnosti pri izbrani temperaturi. V skladu s pričakovanji sta tako toplotna kot tudi spinska prevodnost pri vseh temperaturah močno odvisni od parametra  $\delta$ , ki določa jakost nereda. Za manjše vrednosti ( $\delta < 0.3$ ), se pojavi lokalizacija vzbujenih stanj pri nizkih temperaturah ne zazna, medtem ko pri večjih neredih velja  $\lim_{T \rightarrow 0} \kappa(T) = 0$  in  $\lim_{T \rightarrow 0} \sigma(T) = 0$ . Izkaže pa se, da je približek linearnih stanj veljaven zgolj pri zelo nizkih temperaturah ( $\tilde{T} \lesssim 0.05$ ), saj se spini v verigi že kmalu nad to temperaturo pričnejo zvijati in nastajati začnejo domenske stene, ki predstavljajo drugačno obliko nizkotemperturnih vzbuditev. Zato sem preveril še transportne lastnosti verige v izmenjujočem magnetnem polju, ki spine v verigi sili k osnovnemu stanju. V primeru zunanjega izmenjujočega polja je približek linearnih stanj veljaven pri precej višjih temperaturah (odvisno od jakosti polja), zato se tudi lokalizirana stanja pojavljajo precej dlje. Prav tako pa v izmenjujočem magnetnem polju ni nobenega nelokaliziranega stanja in vse skupaj vodi do tega, da se vrhova funkcij  $\kappa(T)$  in  $\sigma(T)$  pojavita pri veliko višji temperaturi, kot ob odsotnosti zunanjega polja ( $\tilde{T} \sim 0.5$  namesto  $\tilde{T} \sim 0.07$ ). Pri višjih temperaturah gredo integrali korelacijskih funkcij proti konstantni vrednosti, ki

pa je tudi odvisna od velikosti nereda. Toplotna in spinska prevodnost sta pri višjih temperaturah posledično odvisni zgolj od trivialnih členov pri Green-Kubo formuli,  $T^{-2}$ (toplota prevodnost) in  $T^{-1}$ (spinska prevodnost).

Preveril sem tudi podobnost s preprostim Drudejevim modelom, kjer je pričakovati, da bo spinska prevodnost  $\sigma(T)$  sorazmerna s povprečno prosto potjo vzbuditev,  $l_p(T)$ . Povprečno prosto pot sem ocenil po Drudejevem modelu (enačba 2.2.9). Zaradi konstantne vrednosti specifične topote pri nižjih temperaturah ima  $l_p(T)$  tam podobno odvisnost kot topota prevodnost, pri višjih temperaturah pa  $l_p$  limitira proti konstantni vrednosti, saj tako  $\kappa$  kot tudi specifična topota  $c_V$  pada kot  $T^{-2}$ . Po drugi strani spinska prevodnost pri visokih temperaturah pada kot  $T^{-1}$ , zato funkciji tam nista sorazmerni. A za  $\tilde{T} \lesssim 1$  se pokaže dobro ujemanje obeh odvisnosti. Drudejev model predvidi tudi veljavnost Wiedemann-Franzovega zakona (enačba 2.2.10), ki pa v primeru antiferomagnetne spinske verige ne drži. Razlog se najverjetneje skriva v drugačnih odvisnostih specifične topote in grupne hitrosti vzbuditev, kot jih predvi deva Drudejev model.

V limiti visokih temperatur sem poskusil koreacijske funkcije spinskega toka aproksimirati z Gaussovo funkcijo in približke primerjati z numerično določenimi koreacijskimi funkcijami. Ker je računanje v limiti  $T \rightarrow \infty$  precej lažje, saj imajo vektorji spinov povsem naključno usmeritev, sem lahko preveril visokotemperaturno limito povprečnega kvadrata toplotnega in spinskega toka. Obe limiti sta se dobro ujemali z numeričnimi rezultati. Prav tako sem lahko po principu povprečevanja določil relaksacijski čas  $\tau$ , ki je odvisen zgolj od drugega momenta koreacijske funkcije. Izkazalo se je, da so relaksacijski časi  $\tau$  praktično enaki kot tisti iz numerično pridobljenih koreacijskih funkcij spinskega toka. Prav tako imajo le-te, vsaj pri nižjih neredih, obliko, ki je zelo podobna Gaussovi funkciji. Vse skupaj vodi tudi do podobnih vrednosti spinske prevodnosti. Nekoliko drugačna sta edino primera z  $\delta = 0.6$  in  $\delta = 0.8$ , kjer numerično določena koreacijska funkcija po določenem času izgubi obliko Gaussove funkcije in zade v negativno področje. Posledično je tudi numerično izračunana spinska prevodnost pri visokih temperaturah manjša kot analitično določena.

# Literatura

- [1] Bethe, H.A. Z. Physik **71** , 205 (1931).
- [2] A. V. Sologubenko, K. Giannò, H. R. Ott, U. Ammerahl, and A. Revcolevschi, Phys. Rev. Lett. **84**, 2714 (2000).
- [3] N.Hlubek et al, J.Stat.Mech. **03**, 3006 (2012).
- [4] A.Mohan et al, Phys. Rev. B **89**, 104302 (2014).
- [5] N.Takahashi, T.Kawamata, T.Adachi, T.Noji, Y.Koike, K.Kudo and N.Kobayashi, Low Temperature Physics, **850**, 1265 (2006).
- [6] X. Zotos, F. Naef, and P. Prelovsek, Phys. Rev. B **55**, 11029 (1997).
- [7] B.Kramer and A.MacKinnon, Rep. Prog. Phys, **56**, 1469 (1993).
- [8] J.Herbrych, J.Kokalj and P.Prelovšek, Phys. Rev. L **111**, 147203 (2013).
- [9] A.V.Savin, G.P.Tsironis and X.Zotos, Phys. Rev. B **72**, 140402 (2005).
- [10] V.Oganesyan, Phys. Rev. B **80**, 115104 (2009).
- [11] N.W.Ashcroft, N.D.Mermin, *Solid State Physics*, Holt, Rienhart and Winston, (1976).
- [12] L. D. Jongh, *Magnetic Properties of Layered Transition Metal compounds*, Kluwer Academic Publishers, (1990).
- [13] <https://www.uni-muenster.de>.
- [14] J. des Cloizeaux and J. J. Pearson, Phys. Rev. **128**, 2131 (1962).
- [15] P.Drude, Annalen der Physik **306**, 566 (1900).
- [16] R.Kubo, M.Toda and N.Hashitume, *Statistical Physics*, Springer Series in Solid-State Science Vol. 2 Springer-Verlag, Berlin, (1991).
- [17] A.Kundu, *Problems in Transport theory*, (2010).
- [18] A. V. Sologubenko, K. Giannó, H. R. Ott, A. Vietkine, and A. Revcolevschi, Phys. Rev. B **64**, 054412 (2001).
- [19] N. Motoyama, H. Eisaki, and S. Uchida, Phys. Rev. Lett. **76**, 3212 (1996).
- [20] A. Keren, L. P. Le, G. M. Luke, B. J. Sternlieb, W. D. Wu, Y. J. Uemura, S. Tajima, and S. Uchida, Phys. Rev. B **48**, 12926 (1993).
- [21] T. M. Rice, S. Gopalan, and M. Sigrist, Europhys. Lett. **23**, 445 (1993).
- [22] M. Matsuda, K. Katsumata, K. M. Kojima, M. Larkin, G. M. Luke, J. Merrin, B. Nachumi, Y. J. Uemura, H. Eisaki, N. Motoyama, et al., Phys. Rev. B **55**, R11953 (1997).

- [23] A. V. Sologubenko, E. Felder, K. Giannò, H. R. Ott, A. Vietkine, in A. Revcolev-schi, Phys. Rev. B 62, R6108 (2000).
- [24] D.Baeriswyl in L.Degiorgi, *Strong Interactions in Low Dimensions*, Kluwer Academic Publishers, (2004).
- [25] U. Nowak, R. W. Chantrell, and E. C. Kennedy, Phys. Rev. Lett. **84**, 163 (2000).
- [26] M.Lakshmanan, Phil. Trans. R. Soc., **369**, 1939 (2011).
- [27] C.Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, John Wiley and Sons, (1996).
- [28] G.Theodorou, M.Cohen, Phys.Rev.B,**13**, 4597 (1976).
- [29] N.Ohata, R.Kubo, Journal of the Physical Society of Japan, **28**, 6 (1970).