

Динамическая теория тепловых спиновых флуктуаций в металлических ферромагнетиках

© В.И. Гребенников

Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук,
620219 Екатеринбург, Россия

(Поступила в Редакцию 7 апреля 1997 г.)

Развита самосогласованная динамическая теория тепловых спиновых флуктуаций (СФ), описывающая их пространственную корреляцию. Она базируется на методе функционального интегрирования и использует квадратичное представление для свободной энергии электронов во флуктуирующем обменном поле с перенормированными восприимчивостями, учитывающими взаимодействие различных мод СФ. Используется интерполяция между одноузельной и однородной восприимчивостями, которые находятся самосогласованно. Усреднение по флуктуациям приводится с учетом как длинноволновых, так и локальных возбуждений. Сформулирована замкнутая система уравнений для двух неизвестных величин: намагниченности и среднего квадрата обменного поля на узле. Исходными характеристиками конкретного магнетика являются плотность электронных состояний и значение атомного магнитного момента при $T = 0$. Предложен способ отделения относительно медленных тепловых СФ от быстрых нулевых СФ, формирующих основное состояние магнетиков. При $T = 0$ имеем систему уравнений теории среднего поля. Температура возбуждает тепловые СФ, которые описываются с учетом корреляции во времени и пространстве. Вычислены намагниченность, восприимчивость, величина СФ и их распределение по импульсам, степень ближнего магнитного порядка в железе в зависимости от температуры в ферромагнитной и парамагнитной фазах, а также при переходе между ними, температура Кюри.

Влияние флуктуаций электронной спиновой плотности на магнитные свойства металлических магнетиков при конечных температурах интенсивно исследуется в течение нескольких десятилетий [1–4]. Последние успехи в описании спиновых флуктуаций (СФ) связаны с использованием метода функционального интегрирования, основанного на преобразовании Стратоновича–Хаббарда [5,6], который позволяет свести вычисления статистической суммы взаимодействующих друг с другом электронов к задаче о движении независимых электронов во внешнем поле, произвольно изменяющемся как в пространстве, так и во времени.

Однако подавляющее большинство работ основано на статическом одноузельном приближении [7–12], в котором флуктуации поля задаются не зависящими от времени потенциалами, хаотически распределенными по узлам кристаллической решетки. Рассеяние электронов на них трактуется в рамках приближения когерентного потенциала (CPA).

Эта теория объяснила закон Кюри–Вейсса для парамагнитной восприимчивости, были получены оценки для температуры Кюри и показано, почему в общем случае ее величина меньше предсказываемой в теории среднего поля Стонера–Вольфарта. Следует отметить, что количественные результаты с использованием рассчитанных из первых принципов зонных структур [13–16] оказались менее успешными, чем расчеты, опирающиеся на модельные плотности состояний [11,17]. В большинстве цитируемых работ, за исключением [8,9,12], учитывались только одномерные спиновые флуктуации вдоль намагниченности, хотя из общих представлений совершенно очевидно, что поперечные флуктуации в ферромагнитной обла-

сти преобладают. Но так делалось и делается до сих пор [17–19].

Попытки выхода за одноузельное приближение в схеме CPA ограничивались рассмотрением парной функции распределения флуктуирующих статических потенциалов на соседних узлах [20,21].

Альтернативный подход предложили Герц и Клеин [22]. Они рассмотрели динамические флуктуации в так называемом длинноволновом пределе и получили некое обобщение известного приближения случайных фаз (RPA) [23] для восприимчивости, зависящей от волнового вектора и частоты. К сожалению, эта теория была развита только для парамагнитной области, поэтому в ней совершенно отсутствует механизм обратного влияния СФ на намагниченность. Авторы применили ее для объяснения возможности существования спиновых волн выше температуры Кюри и при конкретных оценках вновь опирались на статическое приближение. Из-за больших математических трудностей этот подход не получил дальнейшего развития.

Пространственная корреляция СФ изучалась на основе модельного функционала Мураты–Дониаха [24–27] и его обобщений, дающих описанные СФ в рамках классической статистики. В частности, недавно [27] с помощью первопринципных расчетов энергии спиральных спиновых конфигураций были определены параметры эффективного функционала, а затем проведен стандартный термодинамический расчет. Полученные в работе [27] результаты демонстрируют все присущие статическому приближению черты. Это резкий $\sim T$ спад намагниченности при низких температурах, стремление низкотемпературной теплоемкости не к нулю, а к постоянному значению, необходимость введения обрезания по волно-

вому вектору, малая величина эффективного магнитного момента в законе Кюри–Вейсса и так далее. Вместе с тем были получены разумные оценки температуры Кюри в железе, кобальте и никеле.

Большое число работ посвящено изучению эффектов межэлектронных корреляций в основном состоянии модели Хаббарда. Значительно меньше исследовалось их влияние на температурную зависимость свойств переходных металлов. В работах [28,29] метод функционального интегрирования соединен с вариационным методом Гунциллера для вычисления волновых функций электронов с учетом корреляции. Однако и здесь флуктуирующее поле описывалось в одноузельном статическом приближении. Оказалось, что основной эффект электронных корреляций сводится к перенормировке константы взаимодействия. Но поскольку величина ее в любом случае эффективная (определяется по наблюдаемой намагниченности при $T = 0$, будь то теория среднего поля или вариационный подход), то реально эффект электронных корреляций в железе составил примерно 10%, а в никеле — еще меньше. Заметим, что в [28] снова рассматривались только продольные флуктуации. Хотя в некотором смысле учет электрон-электронных корреляций эквивалентен учету динамических флуктуаций поля, но в данном случае учитывались практически лишь "нулевые" (в основном состоянии) флуктуации, и этого оказалось совершенно недостаточно, чтобы получить истинное температурное поведение основных характеристик ферромагнитных металлов.

Итак, хотя в рамках статического подхода удалось качественно или полуколичественно объяснить ряд не поддававшихся ранее описанию физических свойств, для количественного описания необходимо расширить теорию с целью учета динамических СФ в полной мере. В работе автора [3] на основе гауссового подхода была сформулирована динамическая теория локальных (в приближении одноузельного рассеяния) СФ и установлены общие соотношения между результатами динамического и статического описания. Затем [31] динамическая теория была обобщена для коррелированных в пространстве СФ, правда, только в парамагнитной области. Эта задача рассматривалась в связи с проблемой ближнего магнитного порядка и интерпретацией наблюдаемого парамагнитного рассеяния нейтронов. Аналогичная проблема в рамках статического приближения исследовалась Хасегава [14]. Развитие динамической теории стало возможным после того, как выяснилось [32], что для описания рассеяния электронов на СФ совсем не требуется применять схему когерентного потенциала, а вполне достаточно второго порядка теории возмущений.

В данной работе мы развиваем самосогласованную динамическую теорию тепловых флуктуаций электронной спиновой плотности в металлических ферромагнетиках, которая учитывает их пространственную корреляцию. Исходными данными для нее являются плотность электронных состояний рассматриваемого магнетика и

значение намагниченности при $T = 0$. Самосогласованная система уравнений позволяет при произвольной температуре вычислять намагниченность, локальную и однородную восприимчивость, средний квадрат флуктуирующего поля на узле, а также связанные с ними магнитные, термодинамические, спектроскопические и другие свойства электронной подсистемы в ферро- и парамагнитной фазах, а также при переходе между ними.

1. Математическое описание и основные приближения

Мы будем использовать упоминавшуюся выше схему функционального интегрирования. Преобразование Стратоновича–Хаббарда [5,6,22] позволяет свести задачу вычисления статической суммы взаимодействующих друг с другом электронов к нахождению статсуммы электронов во флуктуирующем во времени и пространстве обменном поле с последующим интегрированием по всевозможным его конфигурациям

$$Q = e^{\mathcal{F}/T} = \frac{\int DV \exp(-F_1(V)/T - F_0(V)/T)}{\int DV \exp(-F_0(V)/T)}, \quad (1)$$

T — температура в энергетических единицах. Задача о движении электронов во внешнем поле имеет формально точное решение. Их свободная энергия

$$F_1(V) = T \text{Tr} \ln G(V) + \mu N_e \quad (2)$$

записывается через одночастичную функцию Грина электронов во внешнем поле V

$$G(V) = (z + \mu - H^0 - V)^{-1}. \quad (3)$$

Здесь z — энергетическая переменная, могущая принимать, вообще говоря, комплексные значения, μ — химпотенциал, H^0 — матрица одночастичного гамильтониана системы (без операторов рождения и уничтожения). В равенство (1) входит также собственная энергия обменного поля

$$F_0 = \frac{1}{2} \text{Tr} \frac{V^2}{u}. \quad (4)$$

Система описывается одной эффективной константой взаимодействия u , которая будет в дальнейшем определяться из решения уравнений по известной величине намагниченности при $T = 0$

Здесь использованы матричные обозначения. След Tr обозначает сумму всех диагональных элементов, которая не зависит от конкретного представления матриц. Матричные элементы обменного поля в узельном и временном представлении имеют вид

$$V_{i's's'}(\tau, \tau') = \sigma \mathbf{V}_i(\tau) \delta_{i's'} \delta(\tau - \tau'), \quad (5)$$

где i — номер узлов решетки (атомов), s — спиновые индексы, $\mathbf{V}_i(\tau)$ — действительное векторное обменное поле на узле i , $\tau \in (0; 1/T)$ — "мнимое" время,

появляющиеся при переходе к представлению взаимодействия, σ^α — спиновые матрицы Паули. Преобразование Фурье по координатам и времени позволяет записать эту матрицу в импульсном и частотном (энергетическом) представлении. Она зависит от разности волновых векторов и частот,

$$V_{qq'nn'ss'} = V_{q-q',n-n',ss'}. \quad (6)$$

Из-за ограниченности временного интервала используется ряд Фурье по частотам $\omega_n = 2\pi nT$, кратным температуре T .

Нулевая функция Грина G^0 определяется равенством (3) при $V = 0$. В силу независимости от времени и трансляционной инвариантности одноэлектронного гамильтониана H она диагональна в $q\omega_n$ представлении

$$G_{qq'nn'ss'}^0 = G_{qns}^0 \delta_{qq'} \delta_{nn'} \delta_{ss'}. \quad (7)$$

Аналогичными свойствами обладает и средняя по флуктуирующему полю функция Грина $\langle C(V) \rangle$, которая понадобится в дальнейшем.

Поскольку, как видно, матрицы V и G^0 не диагонализуются одновременно ни в реальном, ни в импульсном пространстве, равенство (2) является формальным и для практического использования должно быть упрощено. Попутно заметим, что в статическом одноузельном приближении в (2) оставляются только диагональные по узлам компоненты функции Грина и поле на частоте $\omega = 0$.

Воспользуемся разложением свободной энергии

$$F(V) = F_1(V) = F_0(V) \quad (8)$$

по флуктуациям поля $\Delta V = V - \langle V \rangle$ относительно его среднего значения $\langle V \rangle$, которое определим из условия обращения в нуль первой вариации полной свободной энергии \mathcal{F} ,

$$T \text{Tr} \left(\langle G(V) \rangle + \frac{\langle V \rangle}{uT} \right) \sigma^\alpha = 0. \quad (9)$$

Сюда в силу равенства (1) входит средняя по флуктуациям поля функция Грина. Усреднение $\langle \dots \rangle$ понимается как интеграл с функцией распределения

$$c(V) = \exp(-F(V)/T) / \int DV \exp(-F(V)/T), \quad (10)$$

в которой $F(V)$ изначально задается равенством (8), но в дальнейшем будет использована квадратичная аппроксимация. Равенство (9) вместе с условием $(\partial \mathcal{F} / \partial \mu = 0)$ сохранения полного числа электронов

$$T \text{Tr} \langle G(V) \rangle = N_e \quad (11)$$

представляют собой уравнения теории Стонера для статического однородного обменного поля $\langle V \rangle$ и химического потенциала μ . Единственное отличие состоит в том, что функция Грина вычисляется не в самом среднем поле $\langle V \rangle$, как в теории Стонера, а с учетом флуктуаций.

Если сделать замену $\langle G(V) \rangle$ на $G(\langle V \rangle)$, то мы придем к уравнениям теории среднего поля Стонера–Вольфарта.

Чтобы найти функцию распределения (10), используем разложение $F(V)$ до членов второго порядка по ΔV (с учетом (9) и (11))

$$\begin{aligned} F(V) &\simeq F^{(2)}(V) \\ &= \frac{1}{2} T \text{Tr} \left[\left(\frac{\delta_{\alpha\beta}}{uT} + \langle G(V) \sigma^\alpha G(V) \sigma^\beta \rangle \right) \Delta V^\alpha \Delta V^\beta \right] \\ &= N \sum_{qn\alpha} \left(\frac{1}{u} - \chi_{qn}^\alpha \right) \Delta V_{qn}^\alpha \Delta V_{q-n}^\alpha. \end{aligned} \quad (12)$$

Равенство (12) содержит определение затравочной восприимчивости χ_{qn}^α электронов при наличии флуктуирующего обменного поля, N — число атомов. Снова, если заменить $G(V)$ на $G(\langle V \rangle)$, приходим к известным формулам для нулевой (петлевой) восприимчивости RPA.

Вычисление неоднородной динамической восприимчивости $\chi_{qn} = \chi_q(i\omega_n)$ — функции четырех переменных, с последующим суммированием по волновым векторам q и частотам $\omega_n = 2\pi nT$ для реальных металлов представляет собой неоправданно сложную процедуру. Ведь на выходе задачи будут всего лишь числа: намагниченность, однородная статическая восприимчивость и так далее. Кроме того, представление (12) имеет принципиальный недостаток: каждая q -гармоника дает свой собственный вклад в энергию (12) и, следовательно, в функцию распределения (10), который не зависит от других гармоник, то есть получается система невзаимодействующих флуктуаций (спиновых волн), что не соответствует физике явления при большом числе возбуждений. Учесть взаимодействие мод можно очень просто, введя локальную (одноузельную) затравочную восприимчивость

$$\chi_l(z) = \frac{1}{N} \sum_q \chi_q(z) = \{ \chi_q(z) \}, \quad (13)$$

которая представляет собой среднюю по всем импульсам зоны Бриллюэна восприимчивость. Операцию усреднения по импульсам будем обозначать символом $\{ \dots \}$. Локальная восприимчивость определяется уже не полной, а лишь только одноузельной функцией Грина, которая выражается через плотность электронных состояний (ПЭС). Соответствующие формулы будут приведены далее.

Наша идея состоит в том, чтобы получить перенормированные восприимчивости χ_q с помощью процедуры интерполяции через две точки: χ_0 и χ_l . Это позволит, с одной стороны, учесть взаимодействие мод, а с другой — определить q -зависимое восприимчивости или связанную с ней пространственную корреляцию СФ. Этот же принцип одновременного учета локальных и пространственных флуктуаций используется при расчете средней функции Грина и соответствующей собственной энергии $\Delta \Sigma$. Второй порядок теории возмущений дает

(предполагается суммирование по повторяющимся индексам)

$$\begin{aligned} \Delta\Sigma_{pm} &= \langle \Delta V_{qn} \langle G(V) \rangle_{p-q, m-n} \Delta V_{-q, -n} \rangle \\ &\simeq \langle \Delta V_{qn} \langle G(V) \rangle_{p-q, m} \Delta V_{-q, -n} \rangle. \end{aligned} \quad (14)$$

Последнее равенство имеет место только для тепловых флуктуаций, обладающих малой энергией по сравнению с характерными энергиями электронной подсистемы.

Введем принцип разделения нулевых (вакуумных в основном состоянии) и тепловых флуктуаций. Взаимодействие электронов друг с другом порождает флуктуации (зарядовой и спиновой) плотности как при $T = 0$, так и при любой конечной температуре. Будем считать, что обусловленные флуктуациями корреляционные эффекты уже как-то учтены при расчете ПЭС при $T = 0$ (методом функционала плотности, вариационным подходом и так далее). Нам остается рассмотреть лишь их T -зависящую часть, или, иначе, тепловые флуктуации. Нулевые колебания имеют широкий спектр энергий ΔE (порядка величины внутриатомного отталкивания электронов u) и короткий период $\Delta t = h/\Delta E$. Тепловые флуктуации обладают малыми энергиями $\Delta E = k_B T$ и поэтому являются относительно медленными возбуждениями. Последняя особенность позволяет отличать их от флуктуаций в основном состоянии, обнаруживать тепловые СФ в "быстрых" по их масштабу времени экспериментах. Равновесные тепловые СФ можно рассматривать [33] как почти статические рассеиватели для электронов проводимости при расчете кинетических свойств магнетиков. По этой причине среди множества всех флуктуаций будем рассматривать только тепловые, или температурные, СФ.

Для вычисления суммы по зоне Бриллюэна в (14) обычно используют две крайние оценки. 1) $\langle G(V) \rangle_{p-q} \simeq \langle G(V) \rangle_p$; при этом считается, что основной вклад вносят квазиоднородные флуктуации с $q \simeq 0$. Это так называемый длинноволновый предел [1,22]. 2) Делается замена на локальную (одноузельную) функцию Грина $g = \{ \langle G(V) \rangle_{p-q} \}$. Это приближение предполагает, что возбуждения с любыми q примерно одинаковы, и называется приближением локальных (хаотических) флуктуаций [1,8]. Наш подход учитывает оба эти аспекта — длинноволновый и хаотический, см. (22). Вернемся к характеристикам СФ. Используя квадратичное разложение для свободных энергий (12), получаем гауссову функцию распределения (10), которая позволяет вычислить среднее значение

$$\langle \Delta V_{qn} \Delta V_{-q, -n} \rangle = \langle |\Delta V_{qn}^\alpha|^2 \rangle = \frac{uT}{2N} \frac{1}{1 - u\chi_{qn}^\alpha}. \quad (15)$$

Проводя суммирование по четным частотам, после аналитического продолжения функций на действительную

ось получаем

$$\begin{aligned} \sum_n \langle |\Delta V_{qn}^\alpha|^2 \rangle &= \sum_n \frac{uT}{2N} \frac{1}{1 - u\chi_{qn}^\alpha} \\ &= \frac{u}{2N} \frac{2}{\pi} \int_0^\infty d\varepsilon \left(B(\varepsilon) + \frac{1}{2} \right) \\ &\quad \times \text{Im} \frac{1}{1 - u\chi_q^\alpha(\varepsilon + i0)}. \end{aligned} \quad (16)$$

Здесь $B(\varepsilon) = (\exp(\varepsilon/T) - 1)^{-1}$ — функция Бозе–Эйнштейна. Слагаемое, пропорциональное $1/2$, описывает вклад не зависящих от температуры нулевых флуктуаций, который, как обсуждалось выше, следует опустить (эффекты нулевых флуктуаций в основном состоянии изучались в работах [34,35]). Из-за сильной локализации Бозе-функции при нулевой энергии возбуждений достаточно знать поведение восприимчивости только при $\varepsilon \rightarrow 0$.

Воспользуемся известным разложением [30]

$$\chi_q(\varepsilon) = \chi_q(0) i \varphi_q \varepsilon. \quad (17)$$

Аппроксимируя Бозе-функцию

$$B(\varepsilon) = \begin{cases} T/\varepsilon, & \varepsilon < \pi^2 T/6, \\ 0, & \end{cases}$$

получим аналитическую формулу для интеграла в (16)

$$\sum_n \langle |\Delta V_{qn}^\alpha|^2 \rangle = \frac{uT}{2N\lambda_q} \frac{2}{\pi} \arctan \frac{\pi^2 uT \varphi_q}{6\lambda_q}, \quad (18)$$

где

$$\lambda_q = 1 - u\chi_q(0)$$

— обратный фактор усиления восприимчивости.

Первый множитель в (18) определяет флуктуации в статическом приближении (формально при $T \rightarrow \infty$). Второй учитывает их динамику и играет роль обрезającego фактора.

Как уже отмечалось, нам потребуется только локальная восприимчивость (13). При ее вычислении воспользуемся формулами (12), в которых заменим среднее от произведения на произведение средних функций Грина. В результате мы приходим к замкнутой системе уравнений.

2. Расчетные формулы

Электронная система в отсутствие внешнего поля описывается плотностью состояний $\nu(\varepsilon)$ и соответствующей одноузельной функцией Грина

$$G^0(\varepsilon) = \int d\varepsilon' \frac{\nu(\varepsilon')}{\varepsilon - \varepsilon'}. \quad (20)$$

Здесь $\nu(\varepsilon)$ — немагнитная ПЭС в расчете на один атом, одну d -зону и один спин, которая считается заданной. В

поле V_{qn}^α , характеризующемся своим средним значением $\bar{V} = \langle V \rangle$ и средним квадратом флуктуаций на узле

$$\zeta^\alpha = \sum_{qn} \left\langle |\Delta V_{qn}^\alpha|^2 \right\rangle, \quad (21)$$

диагональные спиновые компоненты одноузельной функции Грина $g = N^{-1} \sum_k \langle G(V) \rangle_k$ задаются равенством

$$g_s(\varepsilon) = \sum_{s'=\pm} P_{ss'} G^0(\varepsilon - \Delta \Sigma_s(\varepsilon) - s'v), \quad (22)$$

где

$$v = (\bar{V} + \zeta^x + \zeta^y + \zeta^z)^{1/2}, \quad P_{ss'} = \frac{1}{2} \left(1 + ss' \frac{\bar{V}}{v} \right) \quad (23)$$

— среднеквадратичное значение обменного поля и вес его квазиоднородных конфигураций $\pm v$. Обусловленная хаотической частью флуктуаций собственная энергия равна

$$\Delta \Sigma_s(\varepsilon) = \zeta^z g_s(\varepsilon) + (\zeta^x + \zeta^y) g_s(\varepsilon). \quad (24)$$

Из-за аксиальной симметрии всюду $\zeta^x = \zeta^y$. В парамагнитной фазе $\zeta^x = \zeta^y = \zeta^z$. При любом фиксированном значении флуктуаций ζ^α решаются уравнения для среднего поля \bar{V} и химического потенциала μ стандартного типа

$$\bar{V} = -us^z(\bar{V}), \quad n_e = n_+ + n_-, \quad s^z = (n_+ - n_-)/2, \quad (25)$$

где

$$n_s = D \int \frac{d\varepsilon}{\pi} f \operatorname{Im} g_s(\varepsilon) \quad (26)$$

— число электронов с проекцией спина s на узле во всех $D(=5)$ зонах, $f(\varepsilon, T) = (\exp(\varepsilon - \mu)/T + 1)^{-1}$ — функция Ферми, n_e — полное число электронов на атом (известная величина), s^z — средний спиновый момент атома.

При $\zeta^\alpha = 0$ равенства переходят в уравнения теории среднего поля. Это всегда имеет место при $T = 0$, что дает возможность найти эффективную константу взаимодействия u по известной намагниченности насыщения $m_0 = 2\mu_B s_0$.

Величина локальных тепловых флуктуаций поля рассчитывается по формулам

$$\zeta^\alpha = \left\{ \frac{uT}{2\lambda_q^\alpha} \frac{2}{\pi} \arctan \frac{\pi^2 \varphi_l^\alpha uT}{6\lambda_q^\alpha} \right\}, \quad \alpha = x, y, z, \quad (27)$$

$\{\dots\}$ обозначает усреднение по всем импульсам в зоне Бриллюэна, которую приближенно заменим сферой равного объема.

Обратный фактор усиления

$$\lambda_q^\alpha = \lambda_0^\alpha + (\lambda_l^\alpha - \lambda_0^\alpha) q^2 / \{q^2\} \quad (28)$$

определяется интерполяцией по двум его значениям при $q = 0$ и средним по q ,

$$\lambda_0^\alpha = 1 - u\chi_0^\alpha(0), \quad \lambda_l^\alpha = 1 - u\{\chi_q^\alpha(0)\} = 1 - u\chi_l^\alpha(0), \quad (29)$$

которые находятся самосогласованно в процессе решения. В (27) φ_q заменено на среднее значение $\varphi_l = \{\varphi_q\}$.

Локальная восприимчивость χ_l и ее производная по энергии φ_l выражаются [30] через среднюю одноузельную функцию Грина (22)

$$\chi_l^x = -D \int \frac{d\varepsilon}{\pi} f \operatorname{Im} (g_+ g_-),$$

$$\varphi_l^x = d \int \frac{d\varepsilon}{\pi} \left(-\frac{df}{d\varepsilon} \right) \operatorname{Im} g_+ \operatorname{Im} g_-,$$

$$\chi_{ls} = -D \int \frac{d\varepsilon}{\pi} f \operatorname{Im} (d_s)^2,$$

$$\varphi_{ls} = D \int \frac{d\varepsilon}{\pi} \left(-\frac{df}{d\varepsilon} \right) (\operatorname{Im} g_s)^2,$$

$$\chi_l^z = (\chi_{l+} + \chi_{l-})/2, \quad \varphi_l^z = (\varphi_{l+} + \varphi_{l-})/2. \quad (30)$$

Неусиленная статическая однородная спиновая восприимчивость получается численным дифференцированием спиновой плотности (25) по магнитному полю h

$$\chi_0^z = \frac{\Delta s^z}{\Delta h} = (s^z(\bar{V} + h/2) - s^z(\bar{V} - h/2))/h, \quad h \rightarrow 0. \quad (31)$$

Заметим, что среднее обменное поле \bar{V} вполне аналогично внешнему магнитному полю h (в энергетических единицах). По этой причине [32] полная восприимчивость $\tilde{\chi}_0^\alpha$ связана с нулевой (затравочной, петлевой) χ_0^α через знакомый фактор усиления

$$\tilde{\chi}_0^\alpha = \frac{\chi_0^\alpha}{\lambda_0^\alpha} = \frac{\chi_0^\alpha}{1 - u\chi_0^\alpha}. \quad (32)$$

В отсутствие магнитной анизотропии любое малое внешнее магнитное поле вызывает поворот большой спонтанной намагниченности ферромагнетика, что влечет за собой расходимость восприимчивости и, значит, можно положить $\lambda_0^\alpha = 0$ при $T < T_c$. В парамагнитной области это уже не так, и следует использовать формулу (31) для вычисления затравочной восприимчивости $\chi_0^z = \chi_0^x = \chi_0^y$ и (32) — полной, определяемой на опыте восприимчивости $\tilde{\chi}_0$.

Равенства (20)–(32) составляют замкнутую систему уравнений, дающую решение магнитной задачи. Прокомментируем отдельные ее части.

Средняя функция Грина (22) получена из следующих соображений. Если использовать упомянутое выше приближение квазиоднородных флуктуаций [22] в его первоначальном виде, то

$$\begin{aligned} \tilde{G}_k &= \left\langle \frac{1}{\varepsilon - \varepsilon_k - \mathbf{V}\boldsymbol{\sigma}} \right\rangle \simeq \frac{(\varepsilon - \varepsilon_k + \bar{V}\sigma^z)}{(\varepsilon - \varepsilon_k)^2 - \langle V^2 \rangle} \\ &= \sum_{s=\pm} \frac{1}{2} \left(1 + \frac{s\bar{V}\sigma^z}{v} \right) \frac{1}{\varepsilon - \varepsilon_k - sv}. \end{aligned} \quad (33)$$

Суммируя (33) по всем квазиимпульсам k , получим одноузельную функцию Грина в виде (22), но только

при $\Delta\Sigma = 0$. Здесь при усреднении по флуктуациям для упрощения использовано расщепление [11] типа $\langle V^{2n} \rangle \rightarrow \langle V^2 \rangle^n$ и $\langle V^{2n+1} \rangle \rightarrow \langle V^2 \rangle^n \langle V \rangle$. Функция (33) описывает только квазиоднородную часть флуктуаций. Чтобы учесть их хаотическую часть, введем собственную энергию $\Delta\Sigma(\varepsilon)$. Ее величина может быть определена путем минимизации полной свободной энергии \mathcal{F} в (1) по величине $\Delta\Sigma$ в приближении одноузельного рассеяния. Эта процедура приводит к уравнению теории когерентного потенциала. Однако в случае тепловых флуктуаций возмущение невелико и уравнение СРА принимает вид (24), причем при вычислении функций g_s в правой части можно положить $\Delta\Sigma_s = 0$. Уравнение (24) можно также рассматривать просто как поправку к энергии уровня во втором порядке теории возмущений.

Локальная электронейтральность. До сих пор в нашем подходе совершенно не учитывалось взаимодействие флуктуаций зарядовой плотности. Флуктуации обменного поля порождают не только изменения спиновой плотности, но и изменение числа электронов на узлах решетки. Обычно вклад зарядовых флуктуаций в теории функционального интегрирования учитывается путем введения переменного зарядового поля, величина которого оценивается методом перевала [8,12]. Мы отказались от этой процедуры по двум причинам. Во-первых, она усложняет расчетную схему, вводя в нее дополнительную произвольную константу зарядового взаимодействия, и, во-вторых, тем не менее совершенно не учитывает взаимодействие электронов на разных узлах, так как оно отсутствует в исходной модели Хаббарда, а это взаимодействие существенно.

Мы предлагаем другой путь. Нетрудно найти локальную спиновую восприимчивость, определяемую второй вариацией свободной энергии (12), при дополнительном условии — полной электронейтральности атомов. Это приводит к изменению только продольной локальной восприимчивости в ферромагнитной области. Последние формулы (30) заменятся на следующие:

$$\frac{1}{\chi_l^z} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\chi_{l+}} + \frac{1}{\chi_{l-}} \right), \quad \frac{1}{\varphi_l^z} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\varphi_{l+}} + \frac{1}{\varphi_{l-}} \right). \quad (34)$$

Смешивая с некоторым весом восприимчивости, рассчитанные по (34) и (30), можно учесть частичное сохранение локальной электронейтральности при спиновых флуктуациях.

Усреднение по направлениям. Предлагаемая модель эффективно учитывает взаимодействие с разными волновыми векторами q , путем введения средней по q затравочной восприимчивости. Конечно, взаимодействуют между собой и СФ с разными поляризациями. Чтобы как-то учесть это взаимодействие и при этом еще и упростить теорию (что крайне необходимо для ее дальнейшего практического использования), заменим продольную и поперечную восприимчивости их

средним значением

$$\chi^\alpha \rightarrow \chi = (\chi^z + \chi^x + \chi^y)/3, \quad (35)$$

и сделаем аналогичную замену для φ^α . При этом средний квадрат СФ ζ теряет зависимость от поляризации, и при каждой фиксированной температуре основная система уравнений будет содержать всего два неизвестных числа ζ и \bar{V} (конечно, всегда есть еще одна тривиальная переменная — химический потенциал μ). В парамагнитной фазе $\bar{V} = 0$, и остается только средний квадрат флуктуаций поля на узле.

Таким образом, наш подход можно рассматривать как обобщение теории среднего поля Стонера–Вольфарта посредством введения в нее дополнительной переменной ζ — среднего квадрата флуктуаций обменного поля на узле. Эта величина явно зависит от температуры, см. (22), и служит основным источником температурной зависимости свойств металлических магнетиков, связанных с их электронной подсистемой. Старый источник — тепловое размытие распределения Ферми — мало эффективен для интегральных характеристик, хотя может быть важен для описания одночастичных возбуждений на поверхности Ферми.

3. Ближний магнитный порядок

В теории функционального интегрирования вычисление спиновых корреляционных функций эквивалентно расчету парных корреляторов поля V [1]. Напомним, что исходная задача сводится к взаимодействию $\text{Tr } sV$ спиновой плотности электронов s с полем V . Отсюда следует, что

$$\begin{aligned} \langle s_{qn}^\alpha s_{-q-n}^\beta \rangle &= \frac{T^2}{4} \int DV \exp\left(-\frac{F_0}{T}\right) \frac{\partial}{\partial V_{qn}^\alpha} \frac{\partial}{\partial V_{-q-n}^\beta} \\ &\times \exp\left(-\frac{F_1}{T}\right) / \int DV \exp\left(-\frac{F_0 + F_1}{T}\right) \\ &= \frac{\langle V_{qn}^\alpha V_{-q-n}^\beta \rangle}{u^2} - \frac{T}{2uN} \delta^{\alpha\beta}. \end{aligned} \quad (36)$$

Последнее равенство получено интегрированием по частям с использованием явного вида F_0 (4).

Воспользовавшись (15), найдем корреляторы для флуктуаций $\Delta s = s - \langle s \rangle$

$$\langle \Delta s_{qn}^\alpha \Delta s_{-q-n}^\alpha \rangle = \frac{T}{2N} \frac{\chi_{qn}^\alpha}{1 - u\chi_{qn}^\alpha}. \quad (37)$$

Коррелятор (37) определяется полной восприимчивостью $\tilde{\chi}$ типа (32) в полном соответствии с флуктуационно-диссипационной теоремой. В случае гауссовых флуктуаций эта восприимчивость имеет форму RPA, однако нулевая восприимчивость χ (30) изменена за счет флуктуаций.

Суммируя (37) по всем частотам ω_n , получаем коррелятор при совпадающих временах

$$\begin{aligned} \langle \Delta s_q^\alpha(t) \Delta s_{-q}^\alpha(t) \rangle &= \frac{1}{N\pi} \int_0^\infty d\varepsilon \left(B(\varepsilon) + \frac{1}{2} \right) \\ &\times \text{Im} \frac{\chi_q^\alpha(\varepsilon)}{1 - u\chi_q^\alpha(\varepsilon)}. \end{aligned} \quad (38)$$

Функция (38) определяет, например, парамагнитное рассеяние нейтронов с передачами импульса q . Однако на опыте потери энергии нейтронов ε ограничены их небольшой начальной энергией и функцией пропускания прибора. По этой причине на практике интервал интегрирования в правой части (38) составляет 100–200 meV. Поэтому нулевые (от 1/2) СФ вносят малый вклад, зато тепловые СФ ($B(\varepsilon) \sim T/\varepsilon$) укладываются в энергетическое окно полностью. Наблюдая парамагнитное рассеяние нейтронов, можно оценить степень ближнего магнитного порядка выше T_c [31]. Расчет спиновых корреляторов в статическом приближении проведен в работах [14].

Получим явное выражение для пространственного коррелятора тепловых СФ при совпадающих временах, используя формулы (38), (17)–(19), а также интерполяцию (28),

$$\begin{aligned} \langle \Delta s^\alpha(r) \Delta s^\alpha(0) \rangle &= N \left\{ \exp(iqr) \langle \Delta s_q^\alpha \Delta s_{-q}^\alpha \rangle \right\} \\ &= \int_0^1 dk 3k \frac{\sin(kr q_D)}{r q_D} \frac{T}{u \lambda_i^\alpha b(k) \pi} \\ &\times \arctan \frac{\pi^2 u T_c}{6 \lambda_i^\alpha b(k)}, \end{aligned}$$

где

$$b(k) = d + k^2(1 - d)/0.6, \quad d = \lambda_0^\alpha / \lambda_i^\alpha. \quad (39)$$

Здесь q_D — радиус сферы Дебая в пространстве волновых векторов, которая содержит число состояний, равное числу атомов в единице объема, $(4/3)\pi q_D^3 = (2\pi)^3 N/\Omega$, $\{q^2\} = 0.6q_D^2$.

На расстояниях r , удовлетворяющих неравенству $r q_D > \pi$, Фурье-образ определяется малыми k , т.е. функцией $k/b(k)$, и мы приходим к знакомому результату

$$\begin{aligned} \langle \Delta s^\alpha(r) \Delta s^\alpha(0) \rangle &\sim \frac{1}{q_D r} \exp(-q_D r/a), \\ a &= \left(\frac{d-1}{0.6} \right)^{1/2}. \end{aligned} \quad (40)$$

Таким образом, отношение факторов усиления для однородной и локальной восприимчивостей $d = (1 - u\chi_l)/(1 - u\chi_0)$ определяет спиновой корреляционный радиус $r_0 = a/q_D$. Для ОЦК-решетки с постоянной a_0 он равен $r_0 \simeq 0.2a_0$. В точке Кюри r_0 расходуется, и спиновые корреляции (40) убывают обратно пропорционально расстоянию.

4. Результаты расчета железа

В дальнейшем предполагается проведение подробных сравнительных исследований различных факторов: динамики СФ, их пространственной корреляции, вкладов поперечных и продольных мод, локальной электронейтральности в переходных металлах и их сплавах с использованием рассчитанных из первых принципов плотностей состояний. Здесь мы ограничимся лишь иллюстрацией возможностей предлагаемого метода на примере железа.

В качестве исходной плотности состояний взята немагнитная ПЭС [36], рассчитанная методом функционала плотности. Из нее исключен постоянный s – p -фон так, чтобы площадь под кривой ПЭС стала равна 10 электронам на атом. В результате получилась зона с полной шириной $W = 13.4$ eV и числом d -электронов на атом $n_e = 7.05$. Далее ПЭС была размыта путем свертки с лоренцевой функцией полуширины $\Gamma = 0.01W$ для того, чтобы устранить нефизические резкие пики, всегда возникающие в зонных расчетах, совершенно неучитывающих затухание одноэлектронных состояний. Полученная в результате такой обработки и нормированная на одно состояние ПЭС $\nu(E)$ приведена на рис. 1. Там же штриховой линией изображена нулевая статическая локальная восприимчивость χ_l в зависимости от положения уровня Ферми ($\mu = E$). Решение уравнений при $T = 0$ дает наблюдаемое значение атомного магнитного момента $m_0 = 2.2\mu_B$ при величине константы обменного взаимодействия $u = 1.29$ eV.

Результаты решения системы уравнений (20)–(32) в зависимости от температуры T , нормированной на экспериментально наблюдаемую температуру Кюри $T_c^{\text{exp}} = 1044$ K показаны на рис. 2. Рассчитанная намагниченность m практически совпала с экспериментальной, изображенной точечной линией, $T_c = 0.98T_c^{\text{exp}}$. Парамаг-

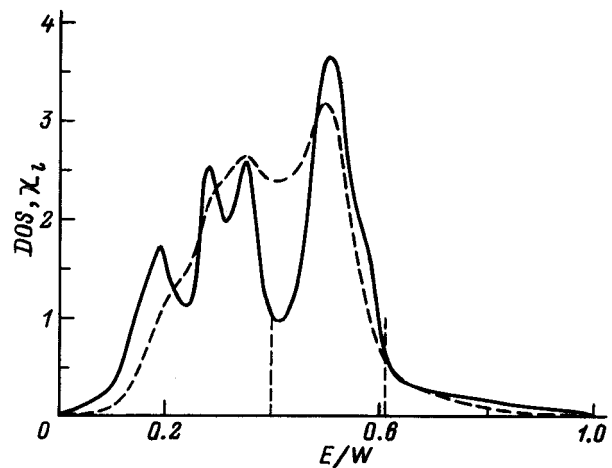


Рис. 1. Немагнитная ПЭС при $T = 0$ (сплошная кривая), локальная восприимчивость χ_l (штриховая кривая) в зависимости от положения уровня Ферми ($\mu = E$). Вертикальные линии — уровни Ферми для электронов с разными спинами, E — энергия в единицах $W = 13.4$ eV.

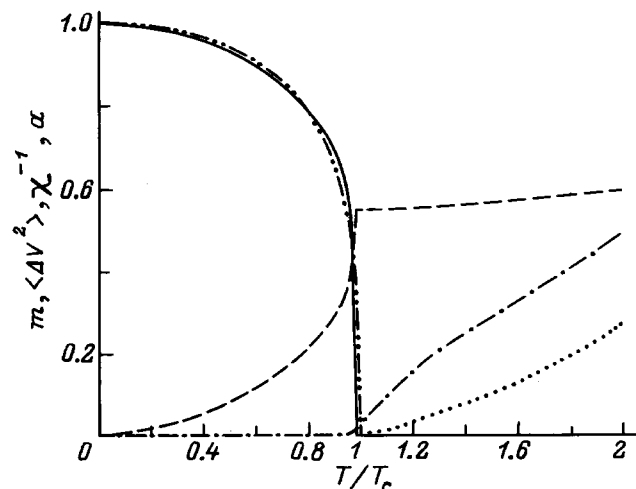


Рис. 2. Намагниченность $m(T)/m(0)$ (сплошная линия — расчет, прерывистая — эксперимент), средний квадрат флуктуаций обменного поля на узле $\langle \Delta V^2 \rangle / V^2(0)$ (в долях обменного расщепления $V(0)$ при $T = 0$) (штриховая линия). Выше T_c : обратная восприимчивость $1/\chi$ (на один атом, в единицах $k_B T_c^{\text{exp}} / \mu_B^2$) (пунктир), безразмерный обратный радиус корреляции $1/a$ (40) (штрихпунктирная линия). Все величины приведены в зависимости от температуры T/T_c^{exp} .

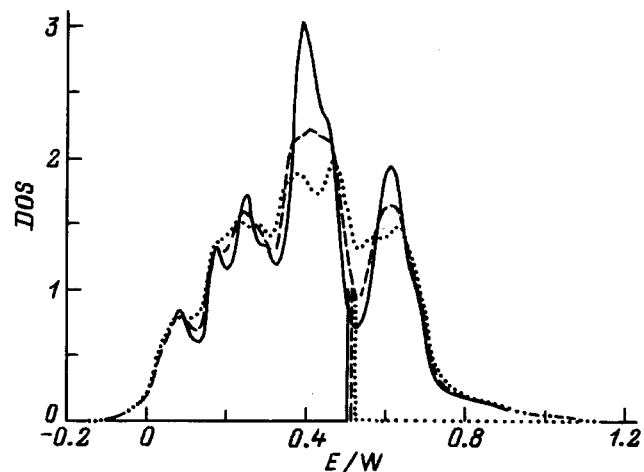


Рис. 3. Интегральная по спину ПЭС при температурах $T = 0$ (сплошная линия), $0.89T_c$ (штриховая кривая) и $2.17T_c$ (пунктир). Вертикальные кривые — положения химического потенциала μ .

нитная восприимчивость следует закону Кюри–Вейсса с эффективным магнитным моментом $m_{\text{eff}} = 3.27\mu_B$ (экспериментальное значение $3.12\mu_B$) и парамагнитной точкой Кюри $\theta_c = 1.08T_c^{\text{exp}}$. На рис. 2 показаны также средний квадрат тепловых флуктуаций обменного поля $\langle \Delta V^2 \rangle = \zeta^z + \zeta^x + \zeta^y$ в единицах обменного расщепления $V(0) = us_0 = 1.42 \text{ eV}$ при $T = 0$, $\langle \Delta V^2 \rangle / V^2(0)$, и безразмерный обратный радиус корреляции a^{-1} (40).

Плотности состояний при трех температурах $T/T_c = 0, 0.89$ и 2.17 приведены на рис. 3.

Эти результаты могут быть сопоставлены с фотоэмиссионными спектрами. Обменное расщепление спектров сохраняется при температурах, значительно превышающих T_c . Тепловые СФ только размывают соответствующую структуру в отличие от результатов теории среднего поля, по которым расщепление полностью исчезает в парамагнитном состоянии, и спектры должны воспроизводить немагнитную ПЭС, показанную на рис. 1.

Рис. 4 показывает нормированное на единицу распределение тепловых спиновых флуктуаций с разными волновыми векторами в зоне Бриллюэна при температуре $T = 1.28T_c^{\text{exp}}$. Эта величина описывает парамагнитное рассеяние нейтронов [31]. Сплошная кривая получена в динамической теории, по формуле (38) без нулевых флуктуаций. Для сравнения приведен результат статического приближения, вычисленный по (37) при $n = 0$.

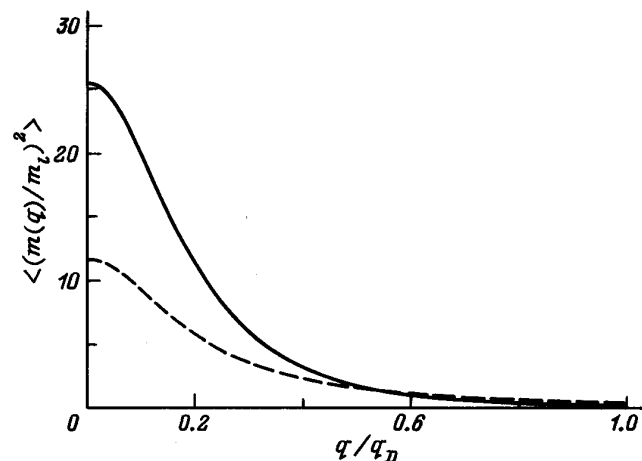


Рис. 4. Распределение СФ по волновым числам q (в долях предельного вектора q_D зоны Бриллюэна) в динамической теории (сплошная кривая) и в статическом приближении (штриховая кривая).

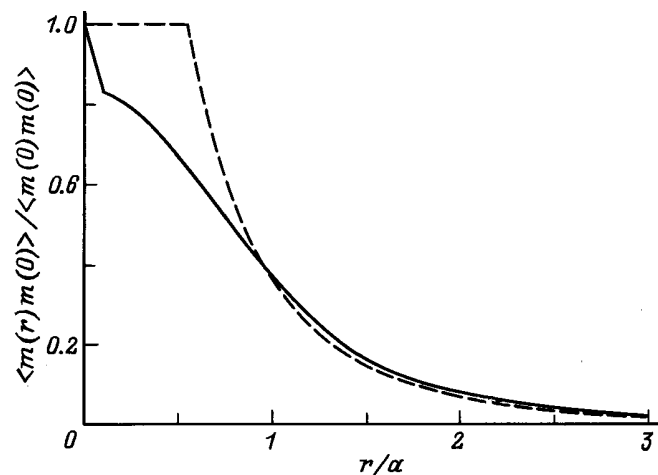


Рис. 5. Спиновая корреляционная функция в зависимости от расстояния r (в постоянных ОЦК-решетки железа a_0). Штриховая линия — ее асимптотика (40).

Соответствующая динамическая корреляционная функция, характеризующая степень ближнего магнитного порядка, изображена на рис. 5. Заметим, что функция $\langle m^2(q) \rangle$ (рис. 4) одинакова во всех узлах обратной решетки, и ее Фурье-образ $\langle m(r)m(0) \rangle$ определен на узлах прямой решетки, т.е. координата r принимает дискретные значения r_i , а $m(r_i)$ понимается как интегральный момент электронов в МТ-сфере вокруг i -го атома. Как видно, корреляция СФ в реальном пространстве невелика, но вполне достаточна для того, чтобы отчетливо наблюдать парамагнитное рассеяние нейтронов.

В заключение отметим, что наша теория опирается на известное гауссово приближение для описания флуктуирующего поля и вместе с тем принципиально отличается от предшествующих подходов. Ключевым моментом стало отделение температурных флуктуаций от нулевых (в основном состоянии при $T = 0$). В результате динамическая задача свелась к расчету квазиупругого рассеяния электронов на флуктуирующем обменном потенциале, который характеризуется средним квадратом тепловых флуктуаций на узле $\langle \Delta V^2 \rangle$. Сама эта величина вычисляется по динамическим формулам и содержит явную зависимость от температуры, которая качественно отличается от той, что получается в статическом подходе. Наши формулы, особенно в виде (16), весьма похожи на известные уравнения RPA. Однако очень важное отличие состоит в том, что нулевая восприимчивость перенормируется за счет СФ и вычисляется самосогласованно.

Итак, предложена простая (по окончательным формулам) теория тепловых СФ, которая учитывает 1) динамику и пространственную корреляцию СФ; 2) взаимодействие разных пространственных мод; 3) вклады как от длинноволновых, так и от хаотических СФ в среднюю одноузельную функцию Грина, которая является фактически единственной характеристикой электронной подсистемы. В качестве входных данных математическая схема использует ПЭС (например, на основании расчетов из первых принципов) и величину атомного магнитного момента при $T = 0$.

Список литературы

- [1] Т. Мория. Спиновые флуктуации в магнетиках с коллективизированными электронами. Мир, М. (1988). 288 с.
- [2] H. Capellmann / Ed. Metallic Magnetism. Springer, Berlin (1987). 232 p.
- [3] В.И. Гребенников, Е.А. Туров. Динамические и кинетические свойства магнетиков. Наука, М. (1986). С. 9–36.
- [4] В.И. Гребенников, Е.А. Туров. Магнитные свойства кристаллических и аморфных сред. Наука, Новосибирск (1989). С. 72–87.
- [5] Р.Л. Стратонович. ДАН СССР **157**, 6, 1097 (1957).
- [6] J. Hubbard. Phys. Rev. Lett. **3**, 2, 77 (1959).
- [7] M. Cyrot. Phys. Rev. Lett. **25**, 13, 871 (1970); J. Phys. (Paris) **33**, 125 (1972).
- [8] J. Hubbard. Phys. Rev. **19**, 5, 2626 (1979); Phys. Rev. **B20**, 11, 4584 (1979).
- [9] J. Hubbard. Sol. Stat. Sci. **29**, 29 (1981).
- [10] H. Hasegawa. J. Phys. Soc. Jap. **46**, 5, 1504 (1979); Solid State Commun. **31**, 8, 597 (1979).
- [11] H. Hasegawa. J. Phys. Soc. Jap. **49**, 1, 178; 3, 963 (1980).
- [12] В.И. Гребенников, Ю.И. Прокопьев, О.Б. Соколов, Е.А. Туров. ФММ **52**, 4, 679 (1981).
- [13] H. Hasegawa. J. Phys. **F13**, 9, 1915 (1983).
- [14] H. Hasegawa. J. Phys. **F13**, 12, 2655 (1983); **14**, 5, 1235 (1984).
- [15] B.L. Gyorffy, A.J. Pindor, J. Staunton, G.M. Stocks, H. Winter. J. Phys. **F15**, 6, 1337 (1985).
- [16] J. Staunton, B.L. Gyorffy, G.M. Stocks, J. Wadsworth. J. Phys. **F16**, 11, 1761 (1986).
- [17] Y. Takehashi. J. Phys. Soc. Jap. **50**, 5, 1505; 7, 2251; 11, 3620 (1981).
- [18] Y. Takehashi. Phys. Rev. **B41**, 9207 (1990).
- [19] F.-j.-Shi, T.-h.-Lin. Phys. Rev. **B49**, 23, 16 269 (1994).
- [20] T. Moriya, H. Hasegawa. J. Phys. Soc. Jap. **48**, 5, 1490 (1980).
- [21] Y. Takehashi, M. Yu. Phys. Rev. **B50**, 9, 6189 (1994).
- [22] J.A. Hertz, M.A. Klenin. Phys. Rev. **B10**, 3, 1084 (1974); Physica **B91**, 49 (1977).
- [23] T. Izuyama, D.-J. Kim, R. Kubo. J. Phys. Soc. Jap. **18**, 7, 1025 (1963).
- [24] K.K. Murata, S. Doniach. Phys. Rev. Lett. **29**, 5, 285 (1972).
- [25] M. Shimizu. Peps Progr. Phys. **44**, 4, 329 (1981).
- [26] W. Weber, B. Kirchner, J. Voitlander. Phys. Rev. **B50**, 2, 1090 (1994).
- [27] M. Uhl, J. Kubler. Phys. Rev. Lett. **77**, 2, 334 (1996).
- [28] Y. Takehashi, P. Fulde. Phys. Rev. **B32**, 3, 1595 (1985).
- [29] Y. Takehashi. Phys. Rev. **B34**, 4, 3243 (1985).
- [30] В.И. Гребенников. ФММ **66**, 2, 227 (1988).
- [31] В.И. Гребенников. J. Magn. Magn. Mat. **84**, 59 (1990).
- [32] В.И. Гребенников. ФММ **64**, 2, 276 (1987).
- [33] Е.А. Туров, В.И. Гребенников. Physica **B159**, 56 (1989).
- [34] В.И. Гребенников, О.Б. Соколов. ФММ **76**, 11, 5 (1993).
- [35] В.И. Гребенников, О.Б. Соколов. J. Phys.: Condens. Matter. **4**, 12, 3283 (1992); Phys. Stat. Sol. (b) **151**, 2, 623 (1989).
- [36] Б.И. Резер, В.И. Гребенников. ФММ **83**, 2, (1997).