

Спиновые флуктуации и температура Кюри в соединениях R_2M_{17} с немагнитными элементами

© В.И. Гребенников, С.А. Гудин

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

E-mail: transmet@ifm.e-burg.ru

(Поступила в Редакцию 20 апреля 1998 г.)

Магнитные свойства материалов для постоянных магнитов на основе двойных соединений R_2M_{17} ($R = Y, Sm; M = Fe, Co$), в том числе с добавлением немагнитных элементов N, Al, Si, исследованы с помощью теории динамических флуктуаций электронной спиновой плотности. Показано, что значение температуры Кюри определяется соотношением энергии обменного расщепления (пропорциональной намагниченности при $T = 0$) и среднеквадратичного значения флуктуаций (пропорционального локальной спиновой восприимчивости). В соединениях железа флуктуации значительно больше, чем в сплавах кобальта, что приводит не только к количественным различиям их характеристик, но и к качественно разному изменению свойств этих материалов при азотировании.

Интерметаллические редкоземельные соединения R_2M_{17} , используемые для приготовления постоянных магнитов, обнаруживают необычное изменение свойств при введении в них немагнитных элементов N, Al, Si [1,2]. Так, например, в соединении Sm_2Fe_{17} температура Кюри T_c возрастает от 389 до 746 К при добавлении 2.9 атомов азота на формульную единицу. Аналогичный рост наблюдается в соединениях Y_2Fe_{17} с азотом, алюминием, кремнием. Соответствующие величины приведены в табл. 1. Заметим также, что в соединении $Y_2Fe_{17}N_{2.6}$ наблюдается весьма значительный рост намагниченности насыщения M_0 при $T = 0$ по сравнению с исходным двойным сплавом.

Обычно подобные эффекты связывают с увеличением постоянной решетки и изменением величины обменных интегралов при увеличении расстояния между атомами железа [3]. Однако параметры решетки изменяются как в сторону увеличения (Al, N), так и в сторону уменьшения (Si) [2], а T_c растет в обоих случаях. Другой магнетик Sm_2Co_{17} , наоборот, снижает T_c от 1189 до 811 К при добавлении 2.7 атомов азота.

В работе [4] были рассчитаны спин-поляризованные плотности электронных состояний (ПЭС) упомянутых соединений и сделаны попытки вычисления температуры Кюри на основе спин-флуктуационной теории Мона–Вольфарта [5]. Количественные результаты оказались неудовлетворительными, хотя сама тенденция роста T_c при добавлении азота была схвачена верно. Эта же теория использовалась для качественной интерпретации экспериментальных результатов в системе Y_2Fe_{17} в работе [2], в которой наряду с магнитными измерениями проведены также исследования других свойств сплавов, в частности теплоемкости.

В дальнейшем [6] системы Sm_2Fe_{17} и Sm_2Co_{17} исследовались в рамках теории локализованных магнитных моментов Гейзенберга с обменными интегралами, полученными в зонных расчетах [7].

Нам представляется, что во всех названных соединениях определяющую роль играют флуктуации спиновой плотности коллективизированных электронов. Данная статья посвящена количественному изучению влияния спиновых флуктуаций (СФ) на магнитные свойства соединений (2)–(17) на базе флуктуационного подхода [8,9].

В основу исследования положена следующая идея. Внутриаомное отталкивание электронов и приводит к двум основным эффектам: (1) к обменному расщеплению энергии состояний с разными спиновыми проекциями $\pm V_0$ и (2) к флуктуациям обменного поля на атоме $\langle \Delta V^2 \rangle$ — как за счет тепловых возбуждений, так и, вообще говоря, вследствие нулевых (при $T = 0$) СФ. Первый эффект (среднее поле) ведет к упорядочению спиновых моментов атомов, а второй (флуктуации), наоборот, вызывает их разупорядочение. Соотношение двух характерных величин и определяет магнитные свойства металлических магнетиков. Введение немагнитных элементов обычно уменьшает обменное расщепление, но вместе с тем ослабляет флуктуации. Совместное действие этих двух противоборствующих факторов приводит к тому, что в одних случаях (Fe) температура Кюри возрастает, а в других (Co) убывает. Аналогичные изменения могут происходить и с намагниченностью M_0 при $T = 0$ — за счет нулевых флуктуаций. К подобным эффектам подавления флуктуаций приводит также увеличение степени заполнения полосы при переходе от железа к кобальту.

Сопоставление величин M_0 и T_c в чистом железе и его соединениях показывает, что в последних СФ играют более значительную роль. В пользу этого свидетельствует также большая величина низкотемпературной теплоемкости $\gamma = C/T$, которая в 3 раза превышает ее значение, полученное по стандартным оценкам из плотности электронных состояний ПЭС на уровне Ферми [2].

Таблица 1. Характеристики магнитных свойств и флуктуаций в соединениях Y-Fe, Sm-Fe и Sm-Co

Состав	$M_0, \mu_B/\text{form.unit}$	$T_c^{\text{exp}}, \text{K}$	T_c, K	V_0, eV	a	β
Y_2Fe_{17}	34.0	309	312	0.97	18.9	1.00
$\text{Y}_2\text{Fe}_{17}\text{Al}_{1.9}$	31.7	384	353	0.82	15.7	0.97
$\text{Y}_2\text{Fe}_{17}\text{Si}_{1.9}$	31.8	430	391	0.81	14.4	0.96
$\text{Y}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_{2.6}$	40.3	694	777	1.10	9.6	0.92
$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$	36.9	389	390	1.10	14.8	0.88
$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_{2.9}$	36.5	746	630	0.95	9.8	0.80
$\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$	26.3	1189	1188	0.74	4.9	0.90
$\text{Sm}_2\text{Co}_{17}\text{N}_{2.7}$	23.4	811	876	0.52	4.8	0.83

1. Особенности спиновых флуктуаций в соединениях R_2M_{17}

Вывод основных уравнений метода флуктуаций электронной спиновой плотности и используемые при этом приближения достаточно подробно описаны в [8,9]. Однако рассматриваемая в данной работе задача имеет ряд новых особенностей. Ранее в качестве исходной бралась единая, "немагнитная" ПЭС, а поляризованные плотности состояний при $T = 0$ получались простой раздвижкой ее на величину $\pm V_0$ для состояний с противоположными спинами. Здесь мы сформулируем уравнения, отталкиваясь от спин-поляризованной ПЭС, которая получается в расчетах методом функционала спиновой плотности [4,6] (соответствующие кривые $\nu_+^0(\varepsilon)$ и $\nu_-^0(\varepsilon)$ отличаются не только по положению, но и по форме (рис. 1)). Кроме того, возникают особенности, связанные с необходимостью учета $s-p$ -состояний немагнитных атомов. Соответствующие измененные уравнения, по которым проводятся расчеты, приведены в Приложении.

В основном тексте мы ограничимся простейшими оценочными соотношениями, необходимыми для обсуждения основных результатов, полученных в полном расчете.

Средний квадрат флуктуирующего поля определяется динамической спиновой восприимчивостью χ

$$\langle \Delta V_{jq\omega_n}^2 \rangle = \frac{T}{2} \frac{u^2 \chi_q^j(\omega_n)}{(1 - u \chi_q^j(\omega_n))}. \quad (1)$$

Здесь T — температура в энергетических единицах, u — константа внутриатомного отталкивания электронов, q — волновой вектор, $\omega_n = 2\pi nT$ — термодинамическая частота (энергия), $j = x, y, z$ — пространственные компоненты векторов. Ось z направлена вдоль средней намагниченности. Ранее было показано [10], что действие случайного поля в основном определяется его интегральной характеристикой — флуктуациями поля на узле

$$\zeta^j = \sum_n \left\{ \langle \Delta V_{jq\omega_n}^2 \rangle \right\}, \quad (2)$$

фигурные скобки обозначают усреднение по волновым векторам зоны Бриллюэна. В дальнейшем будем опус-

кать векторные индексы для сокращения записи. Выпишем оценку для величины (2)

$$\zeta = \frac{\pi U^2 T^2}{6D} \left\{ \frac{\beta \varphi}{\lambda^2} \right\},$$

$$\lambda = 1 - U\beta\chi(0), \quad \varphi = \text{Im} \chi(\varepsilon)/\varepsilon, \quad \varepsilon \rightarrow 0. \quad (3)$$

Среднее значение обменного поля $\bar{V} \equiv \langle V \rangle$ пропорционально средней спиновой поляризации (моменту) s^z одного состояния,

$$\bar{V} = -Us^z. \quad (4)$$

Здесь

$$D = R/N_a, \quad U = Du, \quad \beta = R_d/R, \quad (5)$$

R — число электронных состояний на формульную единицу на один спин, а R_d — число электронных состояний формирующих локальную восприимчивость, которое определим по числу N_{ad} атомов d -типа: $R_d = 5N_{ad}$; N_a — общее число атомов в формульной единице, а D — число электронных состояний на один атом. Все величины в (3) и (4) приведены в расчете на одно электронное состояние для того, чтобы явно выделить зависимость от числа состояний R .

Согласно формулам, приведенным в Приложении, спиновая поляризация s^z и локальная восприимчивость χ, φ

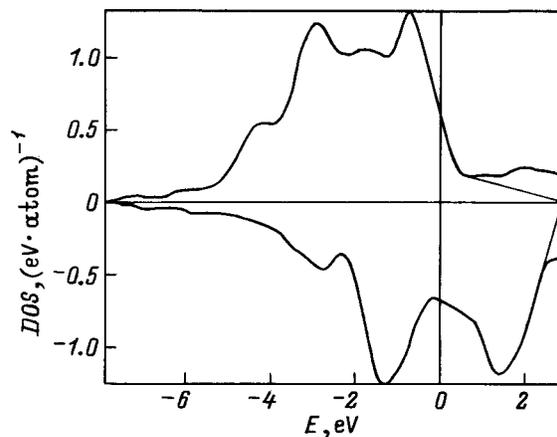


Рис. 1. Выделение (отрезками прямых) замкнутой нулевой плотности состояний из ПЭС $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$, полученной в зонном расчете [6]. Энергия E отсчитывается от уровня Ферми.

определяются фермиевскими интегралами от одноузельной функции Грина $g_s = g_s(\varepsilon; \bar{V}, \zeta)$, которая вычисляется по известной плотности электронных состояний $\nu_s^0(\varepsilon)$ при $T = 0$ с учетом рассеяния электронов на флуктуирующем обменном поле. Таким образом, (3) и (4) образуют замкнутую систему уравнений. Константа взаимодействия U определяется из начального (при $T = 0$) условия

$$s^z(U) = s_0 = M_0/2R, \quad (6)$$

которое из-за отсутствия флуктуаций при $T = 0$ полностью совпадает с уравнением теории среднего поля Стонера–Вольфарта. Величина $2R$ — просто суммарная площадь под двумя кривыми поляризованной плотности состояний.

Уравнения получены в следующей модели. Считается, что однородная намагниченность, или средняя поляризация s^z , формируется всеми состояниями в полосе, как s -, так и d -типа, в то время как отклик на флуктуирующее поле на узле, или локальная восприимчивость χ , определяется только d -состояниями. Данная модель построена на допущении, что быстрые s -электроны рассеиваются на целом кластере атомов, флуктуации поля в пределах которого усредняются. Такие электроны "видят" только однородное среднее поле, и поэтому не вносят вклада в локальную восприимчивость. Это приводит к эффективной перенормировке величины восприимчивости χ , вычисляемой по полной ПЭС, которая задается коэффициентом β , представляющим собой относительный вес d -состояний.

Введем характеристику темпа нарастания среднеквадратичного значения флуктуаций поля с температурой, или температурный коэффициент флуктуаций,

$$a = \left(\sum_j \zeta^j \right)^{1/2} / T \cong \text{const}(T). \quad (7)$$

Величина a в ферромагнитной области почти не зависит от температуры, поскольку электронные характеристики изменяются достаточно слабо из-за того, что увеличение флуктуаций обычно компенсируется уменьшением среднего поля,

$$\bar{V}^2 + 2 \sum_j \zeta^j \cong \text{const}(T) = V_0^2. \quad (8)$$

Равенство (8) фактически является следствием приближенного сохранения величины атомных магнитных моментов, поскольку $\langle V^2 \rangle = U^2 \langle s^2 \rangle$. Фактор 2 в (8) появляется из-за того, что величина ζ определяет в равной степени как хаотическую часть СФ, так и коррелированную, длинноволновую. Температура Кюри определяется из обращения в нуль средней намагниченности или, иначе, $\bar{V}(T_c) = 0$, поэтому из (7) и (8) получим оценку

$$T_c \cong V_0/2a, \quad (9)$$

причем V_0 и a вычисляются при $T = 0$, т.е. по нулевой ПЭС.

Согласно [11], низкотемпературная теплоемкость $C = \gamma T$ (на атом) определяется равенством $\gamma = \gamma_f + \gamma_e$,

$$\gamma_f = \frac{\pi k_B^2 U}{3} \sum_j \left\{ \frac{\beta \varphi}{\lambda} \right\}, \quad \gamma_e = \frac{\pi^2}{3} k_B^2 \bar{\nu}, \quad (10)$$

где γ_f и γ_e — вклады СФ и ферми-возбуждений соответственно, а $\bar{\nu} = D(\nu_+(\mu) + \nu_-(\mu))$ — плотность состояний на уровне Ферми μ .

Как видно из (3), (7) и (10), $a \propto \gamma_f$. Таким образом, в магнетиках с большой низкотемпературной теплоемкостью (превышающей вклад одночастичных возбуждений) ожидается обратная зависимость T_c от γ .

Формула (3) указывает на еще одну закономерность. В веществах с сильными флуктуациями (намагниченность велика, а температура Кюри относительно мала) вероятно большое изменение T_c при слабой вариации электронных характеристик системы. Действительно, в этом случае знаменатель λ близок к нулю, поэтому небольшая коррекция взаимодействия U , веса d -состояний β , или статической локальной восприимчивости χ (последняя пропорциональна числу дырок в полосе) может привести к резкому возрастанию или убыванию СФ и соответственно температуры Кюри. В магнетиках с высокими T_c флуктуации меньше и знаменатель λ в (3) далек от нуля, поэтому величина a в (9) достаточно стабильна, а изменения T_c следуют за изменениями исходного обменного расщепления или нулевой намагниченности, $V_0 \propto M_0$.

2. Модель для описания тройных соединений

При введении в исходное соединение дополнительных элементов растет число атомов N_a и соответственно число электронов N_e на формульную единицу. Кроме того, обычно изменяется магнитный момент M_0 при $T = 0$, который мы берем из экспериментальных данных. Меняется также форма кривой ПЭС сплава. Для одних составов новая ПЭС сосчитана, для других нет. Чтобы не вносить дополнительной неопределенности, связанной с искажением ПЭС и выделением из нее области энергий, существенной для магнитных свойств, взаимодействие электронов в пределах которой можно описать с помощью одной константы внутриатомного взаимодействия U (а не функции, зависящей от волнового вектора или энергии), будем считать, что форма плотности состояния при добавлении немагнитных атомов остается неизменной, такой же, как в исходном веществе. Пусть при этом просто увеличивается число состояний на формульную единицу R , которое получает приращение

$$\Delta R = R \Delta N_e / N_e. \quad (11)$$

В этом случае заполнение зоны $n_0 = N_e/R$ не меняется, но, как видно из (5), уменьшается доля состояний, формирующих локальную восприимчивость

$\Delta\beta = -\beta\Delta N_e/N_e$, что приводит к подавлению флуктуаций (при прочих равных условиях). Начальное (при $T = 0$) значение спиновой поляризации s_0 изменяется согласно равенству (6), что может привести к соответствующему изменению эффективного взаимодействия U и расщепления V_0 .

3. Результаты

1) **Исходные данные.** В качестве входных данных берутся экспериментальное значение намагниченности при нулевой температуре M_0 (в магнетонах Бора на формульную единицу), число электронов N_e , а также спин-поляризованные плотности состояний $\nu_s^{OR}(\varepsilon)$ (по результатам зонных расчетов).

На рис. 1 показаны кривые ПЭС для $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$, взятые из [6]. Плотности состояний содержат явно выраженный большой вклад от $3d$ -состояний и справа от него хвост, сформированный состояниями других зон, тянущийся, вообще говоря, до сколь угодно далеких энергий. Поскольку мы ограничиваемся взаимодействием, не зависящим от энергии, необходимо выделить состояния, лежащие в ограниченном энергетическом интервале, матричный элемент обменного взаимодействия на которых и описывается константой u , т. е. надо замкнуть зону. Соответствующее обрезание делается на глаз, как показано на рис. 1 отрезками прямых линий.

Конечно, такая процедура содержит известный произвол и оказывает некоторое влияние на результаты последующего расчета. Именно по этой причине мы задаем обрезанные ПЭС для исходных, двойных соединений и больше не меняем их при расчетах тройных сплавов.

2) **Количественные результаты.** После описанной предварительной обработки ПЭС задача становится однозначно определенной, и проводится расчет по схеме, описанной в Приложении. Вычисляются зависимости намагниченности M , обратной однородной восприимчивости χ_0^{-1} , теплоемкости, среднего квадрата флуктуаций поля $\zeta^x + \zeta^y + \zeta^z$ от температуры T/T_c^{exp} . Они представлены на рис. 2 для $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$. Заметим, что в процессе расчета находятся также одноузельная функция Грина, затухание одноэлектронных состояний, комплексная локальная восприимчивость, пространственная спиновая корреляционная функция и т.д. Это позволяет вычислить температурное поведение самых разнообразных свойств и характеристик системы [8,9], например таких, как фотоэмиссионные и рентгеновские спектры валентной полосы, электросопротивление, скорость релаксации в ЯМР, парамагнитное рассеяние нейтронов, радиус ближнего магнитного порядка и др.

В данной работе ограничимся в основном магнитными характеристиками. В табл. 1 приведены экспериментальные значения намагниченности M_0^{exp} при $T = 0$, температуры Кюри T_c^{exp} , соответствующие величины T_c , полученные в расчете, а также величина обменного поля V_0 (4) и температурный коэффициент флуктуаций a (7) при

$T = 0$. Перенормировка локальной восприимчивости β определяется по формуле (5), причем в ней Fe, Co, Y считаются d -элементами.

Сравним сперва двойные соединения между собой. Все они имеют примерно одинаковые ПЭС [4,6]. Заполнение зоны в $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ больше, чем в соединениях железа, поскольку атом кобальта содержит девять электронов против восьми у железа.

Величина обменного поля V_0 находится в прямой зависимости от намагниченности M_0 , что следует из уравнений (4) и (6). Сопоставляя величины a , характеризующие флуктуации, мы видим, что они отличаются довольно значительно, поэтому разнятся и значения T_c . К такому же результату приводит оценка (9).

В Y_2Fe_{17} флуктуации самые большие, в $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ — самые малые. Это легко понять. Заполнение полосы электронами приводит к уменьшению локальной восприимчивости (χ пропорционально числу пустых состояний в зоне), что вызывает уменьшение флуктуаций и соответственно рост T_c .

Рассмотрим теперь тройные соединения по отношению к исходным двойным. Введение немагнитных элементов обычно уменьшает намагниченность M_0 и обменную энергию V_0 (исключение составляет $\text{Y}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_{2.6}$; причины обсудим позже). Однако в соединениях железа величина T_c значительно возрастает, а в соединениях кобальта, наоборот, падает. Обращаясь к столбцу a , видим, что немагнитные элементы приводят к уменьшению флуктуаций. В SmCoN оно самое маленькое, и намагниченность падает довольно заметно. Числитель в (9) уменьшается сильнее, чем знаменатель, в итоге получается спад T_c . В соединениях железа флуктуации значительно больше, поэтому именно они контролируют изменение величины T_c . Таким образом, всюду работает оценка (9).

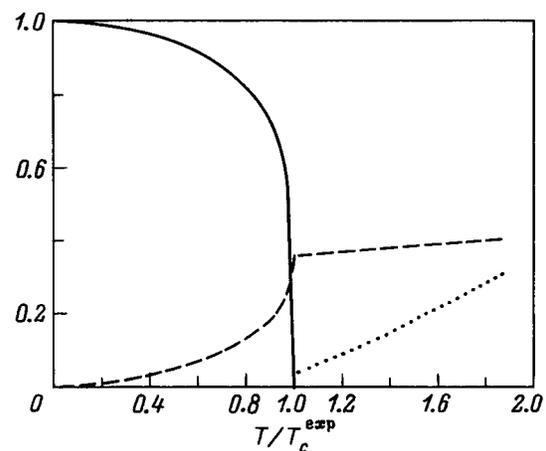


Рис. 2. Рассчитанные характеристики $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ в зависимости от температуры T/T_c^{exp} : относительная намагниченность M/M_0 (сплошная линия); квадрат отношения флуктуаций поля к величине обменного поля при $T = 0$, $(\zeta^x + \zeta^y + \zeta^z)/V_0^2$ (штриховая линия); обратная однородная восприимчивость χ^{-1} (на атом, в единицах $k_B T_c^{\text{exp}}/\mu_B^2$) (пунктирная линия).

Таблица 2. Флуктуационные и электронные вклады в теплоемкость системы Y-Fe

Состав	$\gamma_f, \text{mJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}$	$\gamma_e, \text{mJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}$	$\gamma_f + \gamma_e, \text{mJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}$	$\gamma^{\text{exp}} [2], \text{mJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}$
Y_2Fe_{17}	125	55	180	215
$\text{Y}_2\text{Fe}_{17}\text{Al}_{1.9}$	115	65	180	186
$\text{Y}_2\text{Fe}_{17}\text{Si}_{1.9}$	106	66	172	150
$\text{Y}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_{2.6}$	62	55	117	—

3) Нулевые флуктуации. Обсудим увеличение M_0 при добавлении азота в Y_2Fe_{17} , теперь уже на качественном уровне, поскольку наш подход специально приспособлен для описания только тепловых (низкоэнергетических) флуктуаций, $\langle \Delta V^2 \rangle = 0$ при $T = 0$. Однако это отнюдь не означает, что СФ отсутствуют в основном состоянии. Просто мы исключили из рассмотрения нулевые колебания, считая, что они учтены в исходном расчете ПЭС методом функционала спиновой плотности. Первоначальные уравнения теории динамических флуктуирующих полей содержат вклад от нулевых флуктуаций [10], более того, он поддается расчету [12]. Но здесь мы не будем углубляться в теорию, а ограничимся естественным предположением: если велики тепловые флуктуации (величина a), то будут велики и нулевые флуктуации тоже. Тогда введение азота будет подавлять не только тепловые, но и нулевые флуктуации. Последнее и приводит к росту M_0 в $\text{Y}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_{2.9}$. Заметим, что подобная трактовка изменения величины намагниченности вполне применима и к другим соединениям. Азот в $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$, с одной стороны, непосредственно уменьшает намагниченность, а с другой — опосредованно, через подавление флуктуаций, увеличивает. В результате наблюдается почти полная компенсация его влияния на M_0 . И наконец, в $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ флуктуации (в том числе нулевые) малы, в итоге при азотировании M_0 падает.

Расчитанные по формулам (10) вклады СФ и одно-электронных возбуждений в температурный коэффициент теплоемкости приведены в табл. 2 вместе с экспериментальными значениями [2] для системы Y-Fe. Величина флуктуационного слагаемого γ_f падает при добавлении немагнитных атомов в той же мере, в которой возрастает T_c в этих соединениях. Флуктуационный вклад больше электронного γ_e , поэтому измеряемая величина γ^{exp} вполне может характеризовать интенсивность СФ в данной системе. Количественное согласие расчетной величины $\gamma_f + \gamma_e$ с экспериментальной γ^{exp} не очень хорошее. С помощью детализации ПЭС конкретных сплавов и учета фононного усиления можно добиться лучших количественных результатов, но мы не станем этого делать, сознательно оставаясь в рамках описанной выше простейшей модели для тройных соединений, нацеленной на выяснение наиболее общих закономерностей проявления СФ.

Подведем итоги работы. Изучено влияние спиновых флуктуаций на основные магнитные характеристики в

материалах для постоянных магнитов на основе соединений R_2M_{17} с добавлением N, Al, Si. Показано, что величина температуры Кюри определяется двумя факторами: энергией обменного расщепления спиновых состояний и температурным коэффициентом флуктуаций. Последний пропорционален локальной спиновой восприимчивости, которая в свою очередь определяется концентрацией дырок в d -полосе. Добавление немагнитных элементов приводит к ослаблению спиновых флуктуаций. В соединениях железа, где СФ велики (относительно низкие T_c , большая теплоемкость), это вызывает значительный рост температуры Кюри. В сплавах кобальта СФ значительно меньше, поэтому влияние на них немагнитных атомов менее существенно, и результат определяется прямым действием добавленных элементов на намагниченность, что ведет к уменьшению T_c . Расчеты на основе теории флуктуаций электронной спиновой плотности с использованием поляризованных плотностей состояний показывают достаточно хорошее количественное согласие с экспериментальными данными. Распространение сформулированного подхода в направлении учета нулевых СФ позволяет понять влияние последних на величину намагниченности насыщения при нулевой температуре.

Приложение

Пусть известны зависящие от энергии ε поляризованные плотности состояний $\nu_s^{OR}(\varepsilon)$ с проекциями спина $s = \pm$, намагниченность M_0 (в магнетонах Бора) при $T = 0$ и число электронов $N_e = \sum N_{ei}N_{ai}$ (сумма по элементам i , число атомов которых N_{ai} , каждый из них имеет N_{ei} валентных электронов по таблице элементов Менделеева). Все перечисленные величины рассчитаны на одну формульную единицу.

Найдем число состояний данной поляризации и нормированные на одно состояние ПЭС

$$R_s = \int d\varepsilon \nu_s^{OR}(\varepsilon), \quad \nu_s^0(\varepsilon) = \nu_s^{OR}(\varepsilon)/R_s. \quad (\text{П1})$$

В дальнейшем нам понадобится одноузельная функция Грина

$$G_s^0(\varepsilon) = \int d\varepsilon' \nu_s^0(\varepsilon')(\varepsilon - \varepsilon')^{-1},$$

$$\text{Im } G_s^0(\varepsilon) = \pi \nu_s^0(\varepsilon). \quad (\text{П2})$$

Среднее значение обменного поля $\langle V \rangle$ пропорционально спиновому моменту атома $D\langle s^z \rangle$:

$$\langle V \rangle = -uD\langle s^z \rangle. \quad (\text{П3})$$

Средний квадрат флуктуаций каждой векторной компоненты x, y, z поля на узле (2) определяется восприимчивостью

$$\zeta = \left\{ \frac{u^2 D \beta \chi_l T}{\pi \lambda_l t_q} \operatorname{arctg} \frac{\pi^2 \varphi T}{6 \chi_l \lambda_l t_q} \right\},$$

$$D = R/N_a, \quad \beta = R_d/R, \quad R = (R_+ + R_-)/2. \quad (\text{П4})$$

Здесь u — константа взаимодействия электронов на атоме, D — число состояний на один атом (и один спин), $\langle s^z \rangle$ — спиновый момент одного электронного состояния, R_d — число d -состояний, а R — число всех состояний на формульную единицу, β — доля состояний d -типа, которые формируют локальную восприимчивость, что подробно рассматривается в основном тексте статьи. Фигурные скобки обозначают процедуру усреднения по волновым векторам q в зоне Бриллюэна. Величины χ_l , φ , t_q характеризуют компоненты нулевой (без электрон-электронного взаимодействия) комплексной динамической спиновой восприимчивости $\chi_q(\varepsilon)$ при тепловых энергиях ($\varepsilon \approx k_B T$) в расчете на одно состояние

$$\chi_q(\varepsilon) \cong \chi_q(1 - i\varepsilon\varphi/\chi_q)^{-1} \cong \chi_q + i\varepsilon\varphi, \quad \chi_q \equiv \chi_q(0), \quad (\text{П5})$$

$$\lambda_q = 1 - uD\chi_q = \lambda_l t_q = \lambda_0 + (\lambda_l - \lambda_0) q^2 / \{q^2\}, \quad \lambda_l = 1 - uD\beta\chi_l. \quad (\text{П6})$$

Последнее равенство (П6) обеспечивает простейшую изотропную интерполяцию неоднородной статической восприимчивости по ее значению χ_0 (с нулевым волновым вектором) и среднему значению в зоне Бриллюэна, или, иначе, по локальной восприимчивости χ_l , описывающей отклик на обменное поле действующее на одном атоме (внутри МТ-ячейки). Величины χ_0 , χ_l , φ вычисляются, а зависимость от волнового вектора q фактически задается функцией t_q , определенной в (П6). Среднее значение $\{t_q\} = 1$. Если воспользоваться им в (П4), то получим предел теории локальных флуктуаций.

Заметим, что формула (П4) для флуктуаций немного отличается от приведенной в [8]. Там восприимчивость вычислялась из второго равенства (П5), а здесь использовано первое равенство, которое дает правильную, нулевую асимптотику при $\varepsilon \rightarrow \infty$, что обеспечивает строгий предельный переход к статическому, или высокотемпературному пределу. Для этого в (П4) достаточно сделать замену $\operatorname{arctg} \dots \rightarrow \pi/2$.

Средний спиновый момент определяется интегралами от одноузельной функции Грина с функцией Ферми

$$f(\varepsilon) = \left(\exp(\varepsilon - \mu)/T + 1 \right)^{-1},$$

$$\langle s^z \rangle = (n_+ - n_-)/2, \quad n_s = \int \frac{d\varepsilon}{\pi} f(\varepsilon) \operatorname{Im} g_s(\varepsilon). \quad (\text{П7})$$

Компоненты восприимчивости имеют вид

$$\chi_l^z = (\chi_l^+ + \chi_l^-)/2, \quad \chi_l^\pm = - \int \frac{d\varepsilon}{\pi} f(\varepsilon) \operatorname{Im} g_\pm^2(\varepsilon), \quad \chi_l^{x,y} = - \int \frac{d\varepsilon}{\pi} d\varepsilon f(\varepsilon) \operatorname{Im} (g_+(\varepsilon)g_-(\varepsilon)). \quad (\text{П8})$$

Здесь можно заменить $-f$ на $1 - f$, т.е. перейти от интегрирования по заполненной части зоны к пустой.

Мнимые части локальной восприимчивости (П5) фактически определяются квадратом ПЭС на уровне Ферми,

$$\varphi_l^z = - \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} \frac{\partial f}{\partial \varepsilon} \left((\operatorname{Im} g_+)^2 + (\operatorname{Im} g_-)^2 \right), \quad \varphi_l^{x,y} = - \int \frac{d\varepsilon}{\pi} \frac{\partial f}{\partial \varepsilon} \operatorname{Im} g_+(\varepsilon) \operatorname{Im} g_-(\varepsilon) \cong \pi\nu_+(\mu)\nu_-(\mu). \quad (\text{П9})$$

Статическая однородная восприимчивость находится численным дифференцированием (П7)

$$\chi_0^z = \Delta\langle s^z \rangle / \Delta\langle V \rangle. \quad (\text{П10})$$

Усредненная по флуктуациям поля функция Грина $g_s(\varepsilon; \langle V \rangle, \zeta)$ получается из нулевой (П2) по формулам

$$g_s(\varepsilon) = \sum_{s'=\pm} P_{ss'} G_{s'}^0 \left(\varepsilon - \Delta\Sigma_s(\varepsilon) + s'(v - v_0) \right), \quad P_{ss'} = \frac{1}{2} \left(1 + ss' \frac{\langle V \rangle}{v} \right), \quad v = \left(\langle V \rangle^2 + \zeta^z + \zeta^x + \zeta^y \right)^{1/2}, \quad \Delta\Sigma_s(\varepsilon) = \zeta^z g_s(\varepsilon) + (\zeta^x + \zeta^y) g_{-s}(\varepsilon). \quad (\text{П11})$$

Здесь когерентный потенциал $\Delta\Sigma_s(\varepsilon)$ (во втором порядке теории возмущений) описывает рассеяние электронов на хаотической части флуктуирующего поля, а множители $P_{ss'}$ определяют вклад длинноволновых флуктуаций.

В отсутствие флуктуаций (при $T = 0$)

$$g_s(\varepsilon) = G_s^0 \left(\varepsilon + s(|\langle V \rangle| - v_0) \right). \quad (\text{П12})$$

Энергетический сдвиг v_0 определяется из требования исчезновения намагнитченности при $\langle V \rangle = 0$,

$$\int \frac{d\varepsilon}{\pi} f(\varepsilon) \operatorname{Im} \left(G_+^0(\varepsilon - v_0) - G_+^0(\varepsilon + v_0) \right) = 0, \quad (\text{П13})$$

что отражает специфику модели с разными нулевыми ПЭС для двух спиновых состояний. В случае единой формы кривой ПЭС обе функции, стоящие под интегралом, совпадают при всех энергиях и равны немагнитной ПЭС.

Заметим, что если пренебречь поляризацией $\Delta\Sigma_s(\varepsilon)$, то симметричная компонента функции Грина $g_0 = (g_+ + g_-)/2$ равна

$$g_0(\varepsilon) = \frac{1}{2} \sum_{s'=\pm} G_{s'}^0 \left(\varepsilon - \Delta\Sigma_0 + s'(v - v_0) \right) \cong \frac{1}{2} \sum_{s'=\pm} G_{s'}^0 \left(\varepsilon - \Delta\Sigma_0 \right) \cong g_0(\varepsilon)|_{T=0}, \quad (\text{П14})$$

так как $v \cong \text{const} \cong v_0$. Последнее равенство получается, если полностью пренебречь $\Delta\Sigma_s(\varepsilon)$.

Алгоритм решения. Положим $T = 0$. Из уравнения (П13) находим сдвиг v_0 . Затем находим величину $\langle V \rangle = V_0$, из начального условия $\langle s^z \rangle (\langle V \rangle) = s_0 = M_0/2R$ с использованием (П7) и (П12), и значение константы взаимодействия u из (П3).

Наша система уравнений содержит всего три неизвестные величины: $\langle V \rangle$, $\zeta^x = \zeta^y$ и ζ^z . Фиксируем температуру T . Зададим стартовые значения флуктуаций ζ . После этого функция Грина g_s однозначно определяется только величиной $\langle V \rangle$, которую находим, решая (П3), например, методом половинного деления отрезка. Вычисляем по (П4) новые значения компонент ζ . Повторяем эту процедуру до полного согласования по ζ . Конечно, все операции выполняются с учетом условия сохранения числа электронов $n_+ + n_- = n_0 = N_e/R$, которое определяет величину химпотенциала μ , входящую в функцию Ферми.

Для простоты все конкретные расчеты проводились с усредненными компонентами локальной восприимчивости

$$\chi_i^j \rightarrow \langle \chi_i \rangle = (\chi_i^x + \chi_i^y + \chi_i^z)/3.$$

Список литературы

- [1] M. Katter, J. Wecker, C. Kuhrt, L. Shultz. J. Magn. Magn. Mater. **114**, 35 (1992); Y. Otani, D.P.F. Hurley, H. Sun, J.M.D. Coey. J. Appl. Phys. **69**, 8, 5584 (1991).
- [2] А.Г. Кучин, Н.И. Коуров, Ю.В. Князев, Н.М. Клейнерман, В.В. Сериков, Г.В. Иванова, А.С. Ермоленко. ФММ **79**, 2, 41 (1995); A.G. Kuchin, N.I. Kourov, Yu.V. Knyazev, N.M. Kleinerman, V.V. Serikov, G.V. Ivanova, A.S. Ermolenko. Phys. Stat. Sol. (a) **155**, 479 (1996).
- [3] P.C.M. Gubbens, A.M. van der Kraan, T.H. Jacobs, K.H.J. Buschow. J. Less-Comm. Met. **159**, 173 (1990).
- [4] S.S. Jaswal, W.B. Yelon, G.C. Hadjipanayis, Y.Z. Wang, D.J. Sellmyer. Phys. Rev. Lett. **67**, 644 (1991).
- [5] P. Mohn, E.P. Wohlfarth. J. Phys. F: Met. Phys. **17**, 12, 2421 (1987).
- [6] R.F. Sabiryanov, S.S. Jaswal. Phys. Rev. Lett. **79**, 1, 155 (1997).
- [7] A.I. Liechtenstein, M.I. Katsnelson, V.P. Antropov, V.A. Gubanov. J. Magn. Magn. Mater. **67**, 65 (1987).
- [8] В.И. Гребенников. ФТТ **40**, 1, 90 (1998).
- [9] В.И. Гребенников, С.А. Гудин. ФММ **85**, 3, 20 (1998).
- [10] V.I. Grebennikov. J. Magn. Magn. Mater. **84**, 59 (1990); В.И. Гребенников. ФММ **66**, 2, 227 (1998).
- [11] В.И. Гребенников, Н.И. Коуров. ФТТ **39**, 7, 1257 (1997).
- [12] V.I. Grebennikov, O.B. Sokolov. J. Phys.: Condens. Mater. **4**, 12, 3283 (1992); Phys. Stat. Sol. (b) **151**, 2, 623 (1989); В.И. Гребенников, О.Б. Соколов. ФММ **76**, 11, 5 (1993).