

01,11

Электронная структура и магнитный фазовый переход в геликоидальных ферромагнетиках $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$

© А.А. Повзнер, А.Г. Волков, Т.А. Ноговицына

Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина,
Екатеринбург, Россия

E-mail: a.a.povzner@urfu.ru

(Поступила в Редакцию 10 июля 2017 г.)

LSDA + U + SO-расчеты электронной структуры геликоидальных ферромагнетиков $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ в приближении виртуального кристалла, дополнены учетом взаимодействия Дзялошинского–Мория и ферромагнитных флуктуаций спиновой плотности коллективизированных d -электронов с хаббардовскими взаимодействиями на хаотически распределенных по узлам атомах Fe и Co. Уравнение магнитного состояния в развитой модели описывает геликоидальный ферромагнетизм и его исчезновение, сопровождаемое возникновением максимума однородной магнитной восприимчивости при температуре T_C и киральных флуктуаций локальной намагниченности при $T > T_C$. Исследуются причины того, почему магнитный вклад в теплоемкость при фазовом магнитном переходе изменяется монотонно, а объемный коэффициент теплового расширения (ОКТР) в области низких температур отрицателен и имеет широкий минимум вблизи T_C . Показано, что ОКТР при переходе в парамагнитное состояние (при температуре T_S), меняет знак.

Результаты были получены в рамках задания Министерства образования и науки РФ (контракт 3.9521.2017/8.9).

DOI: 10.21883/FTT.2018.02.45372.232

1. Введение

Кристаллическая структура сильно коррелированных геликоидальных ферромагнетиков на основе соединений и сплавов MnSi, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ и др. относится к структурному типу B20 с пространственной группой $P2_13$, для которой характерно отсутствие центра инверсии. Такая симметрия приводит к антисимметричному релятивистскому обмену Дзялошинского–Мория (ДМ) [1]. В соответствии с моделью Бака–Янсена [2], конкуренция ДМ-взаимодействия с неоднородным обменным взаимодействием в ферромагнетике приводит к наблюдаемому на эксперименте геликоидальному ферромагнетизму с аномально большими периодами спиновой сверхструктуры [3].

Эксперимент показывает, что при температуре T_C в рассматриваемых киральных магнетиках наблюдается магнитный фазовый переход, приводящий к исчезновению геликоидального ферромагнитного упорядочения („катастрофа“ модели Бака–Янсена). Этот переход сопровождается формированием температурных максимумов однородной магнитной восприимчивости [4]. При этом картина температурных зависимостей теплоемкости и ОКТР не однозначна. Так в MnSi вблизи T_C возникают лямбда-подобные аномалии, с последующим формированием „плеча“ на температурных зависимостях теплоемкости и ОКТР [5]. В геликоидальных ферромагнетиках $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ вблизи температуры максимума однородной магнитной восприимчивости (T_C) экспериментально обнаружен сильно размытый по температуре минимум отрицательного ОКТР, но какие-либо особен-

ности на температурной зависимости теплоемкости не наблюдаются [6].

Согласно результатам исследований малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов выше температуры T_C в рассматриваемых геликоидальных ферромагнетиках сохраняется спиновый ближний порядок с киральными флуктуациями [7,8]. Однако природа и причины возникновения такого спинового ближнего порядка, температурные границы его существования, связь с параметрами электронной и атомной структуры не установлены. Во внешнем магнитном поле в области киральных флуктуаций возникает скирмионная фаза, границы существования которой зависят от их химического состава (MnSi, $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, FeGe и др.) [4,9,10].

Ab initio LSDA + U + SO — расчеты электронных спектров для MnSi, $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$, $\text{Fe}_{0.2}\text{Co}_{0.8}\text{Si}$ и $\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{Si}$ с кристаллической структурой B20 описывают возникновение в непосредственной энергетической окрестности химического потенциала разделенных энергетической щелью d -подзон. Нижняя по энергии зона содержит смесь триплетных и синглетных e_g - и t_{2g} -состояний, а верхняя зона формируется преимущественно синглетными t_0 -электронными состояниями [11]. В MnSi химический потенциал расположен в нижней зоне [12], а в геликоидальных ферромагнетиках $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ в верхней зоне [11]. При этом рассчитанные в рамках LSDA + U-моделирования значения магнитных моментов, в обоих случаях заметно превышают значения, получаемые на эксперименте [11,12]. Ранее [13] было показано, что в моносилициде марганца возникают достаточно большие по амплитуде квантовые ну-

левые спиновые флуктуации, учет которых позволяет согласовать LSDA-расчеты магнитных моментов с их экспериментально наблюдаемыми значениями. При этом нулевые спиновые флуктуации скачкообразно исчезают при магнитном фазовом переходе первого рода [13], что приводит к скачку объема и лямбда-подобным аномалиям теплоемкости и ОКТР. В киральных ферромагнетиках на основе $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, возникающие при заполнении синглетных t_0 состояний магнитные моменты и их флуктуации, пока не изучены.

2. Модель

Рассмотрим сильно коррелированную электронную систему t_0 -зоны киральных магнетиков $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ с гамильтонианом

$$H = H_0 + \delta H_U + H_{\text{DM}}. \quad (1)$$

Здесь $H_0 = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \varepsilon_{\mathbf{k}, \sigma}^{(\text{LSDA})} a_{\mathbf{k}, \sigma}^+ a_{\mathbf{k}, \sigma}$ — гамильтониан d -электронов в t_0 -орбитальном состоянии, $a_{\mathbf{k}, \sigma}^+$ ($a_{\mathbf{k}, \sigma}$) — оператор рождения (уничтожения) электрона в t_0 -зоне, \mathbf{k} — вектор квазиимпульса, σ ($= \pm 1$) — спиновый индекс, $\varepsilon_{\mathbf{k}, \sigma}^{(\text{LSDA})} = \varepsilon_{\mathbf{k}}^{(\text{LDA})} - \sigma \Delta$ — электронный спектр d -электронов в t_0 -орбитальном состоянии, рассчитанный в LSDA + U + SO-приближении и приближении виртуального кристалла [11], и отсчитываемый от энергии химического потенциала рассматриваемой электронной системы,

$$\begin{aligned} \delta H_U &= (U_{\text{Fe}} - U_{\text{Co}}) \\ &\times \sum_{\nu} \delta p_{\nu} \left| \sum_{\sigma} \sigma \langle n_{\sigma} \rangle_0 \delta S_{\nu}^{(z)} - \sum_{\sigma} \langle n_{\sigma} \rangle_0 \delta n_{\nu} / 2 \right| \\ &- \sum_{\nu} (U_{\text{Fe}}(1 - p_{\nu}) + U_{\text{Co}} p_{\nu}) \left[(\delta S_{\nu}^{(z)})^2 - (\delta n_{\nu})^2 / 4 \right] \quad (2) \end{aligned}$$

поправка, учитывающая флуктуации электронной плотности, обусловленные межэлектронными корреляциями и различием параметров хаббардовского взаимодействия на узлах оккупированных атомами кобальта или железа (U_{Co} и U_{Fe} — соответственно) [14], $\delta p_{\nu} = p_{\nu} - p$, p — концентрация атомов кобальта, p_{ν} — проекционный оператор, принимающий значения 0 на узле занятом железом и 1 — кобальтом ($p_{\nu}^2 = p_{\nu}$), $n_{\nu, \sigma} = a_{\nu, \sigma}^+ a_{\nu, \sigma}$, $\delta S_{\nu}^{(z)} = S_{\nu}^{(z)} - \sum_{\sigma} \sigma \langle n_{\sigma} \rangle_0 / 2$, $S_{\nu}^{(z)} = \sum_{\sigma} \sigma n_{\nu, \sigma} / 2$, $\delta n_{\nu} = n_{\nu} - \sum_{\sigma} \langle n_{\sigma} \rangle$, $n_{\nu} = \sum_{\sigma} n_{\nu, \sigma}$, $\langle n_{\nu, \sigma} \rangle_0 = \langle n_{\sigma} \rangle_0$ — числа заполнения спиновых d -состояний на узле в приближениях LSDA + U + SO и виртуального кристалла.

В силу релятивистской малости ДМ-взаимодействия, ограничимся его учетом в приближении среднего поля, и будем пренебрегать различием параметров межузельного спин-орбитального взаимодействия между узлами

оккупированными атомами $3d$ -металлов (Fe–Fe, Co–Co, Fe–Co)

$$H_{\text{DM}} \approx \sum_{\mathbf{q}=\pm\mathbf{q}_0} (\mathbf{h}_{-\mathbf{q}}^{(D)} \mathbf{S}_{\mathbf{q}} - \mathbf{d}_{\mathbf{q}} [\mathbf{M}_{\mathbf{q}} \times \mathbf{M}_{-\mathbf{q}}]), \quad (3)$$

где $\mathbf{d}_{\mathbf{q}} = id\mathbf{q}$, d — константа Дзялошинского, \mathbf{q} — вектор квазиимпульса, $\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0}$ ($= \langle \mathbf{S}_{\mathbf{q}_0} \rangle$) — вектор неоднородной намагниченности, $\mathbf{h}_{\mathbf{q}_0}^{(D)} = [\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0} \times \mathbf{d}_{-\mathbf{q}_0}]$ — среднее поле Дзялошинского, $\mathbf{S}_{\mathbf{q}} = \sum_{\sigma, \sigma'} a_{\mathbf{k}, \sigma}^+ \boldsymbol{\sigma}_{\sigma, \sigma'} a_{\mathbf{k}+\mathbf{q}, \sigma'}$ — Фурье-образ оператора спиновой плотности на узле, $\boldsymbol{\sigma}_{\sigma, \sigma'}$ — вектор матриц Паули.

Переходя к определению статистической суммы, воспользуемся мацубаровским представлением взаимодействия ($H(\tau) = \exp(-\tau H_0) H \exp(\tau H_0)$),

$$Z = \text{Sp} T_{\tau} \exp \left(- \int_0^{\tau^{-1}} H(\tau) d\tau \right),$$

где T — температура в энергетических единицах, T_{τ} — оператор упорядочения по мацубаровскому времени τ . Для восстановления исходно изотропной записи гамильтониана Хаббарда введем единичный по модулю вектор \mathbf{e}_{ν} , направленный вдоль оси квантования оператора спина на узле ν в момент „времени“ $\tau - \mathbf{S}_{\nu} = S_{\nu}^{(z)} \mathbf{e}_{\nu}$, и выполним усреднение выражения для статистической суммы по всем возможным направлениям этих векторов [15]

$$\begin{aligned} Z &= \int_0^{4\pi} (d\Omega) \text{Sp} T_{\tau} \exp \left\{ -H_0/T - \sum_{\nu} (U_{\text{Fe}} - U_{\text{Co}}) \delta p_{\nu} \right. \\ &\times \left[\sum_{\sigma} \sigma \langle n_{\sigma} \rangle_0 \mathbf{e}_{\nu} \delta \mathbf{S}_{\nu} - \sum_{\delta} \langle n_{\sigma} \rangle_0 \delta n_{\nu} / 2 \right] \\ &\left. + \sum_{\nu} (U_{\text{Fe}}(1 - p_{\nu}) + U_{\text{Co}} p_{\nu}) [(\mathbf{e}_{\nu} \delta \mathbf{S}_{\nu})^2 - (\delta n_{\nu})^2 / 4] \right\}, \quad (4) \end{aligned}$$

где $(d\Omega) = \prod_{\nu} d\Omega_{\nu}$, $d\Omega_{\nu}$ — элемент телесного угла направлений единичного вектора \mathbf{e}_{ν} , $\nu = (\nu, \tau)$, $\sum_{\nu} (\dots) = \sum_{\nu} \int_0^{\tau^{-1}} (\dots) d\tau$.

Далее, используем процедуру формализма преобразований Стратоновича–Хаббарда [16], сводящих многочастичные взаимодействия в (2) (соответствующие квадратичным слагаемым по оператору спиновой плотности) к взаимодействию электронов с флуктуирующими обменными (ξ) полями. В результате, имеем

$$\begin{aligned} Z &= \int (d\xi) \exp \left\{ - \sum_{\mathbf{q}} \left| \xi_{\mathbf{q}} - \mathbf{e}_0 \delta_{\mathbf{q}, 0} c^{-1} \Delta - \delta_{\mathbf{q}, \pm\mathbf{q}_0} c^{-1} \mathbf{h}_{\mathbf{q}}^{(D)} \right|^2 \right\} \\ &\times Z(\xi, \langle n_{\sigma} \rangle_0), \quad (5) \end{aligned}$$

где $Z(\xi, \langle n_\sigma \rangle_0) = \text{Sp} T_\tau \exp(-T^{-1} H_0^{(LDA)} - T^{-1} \tilde{\mathcal{H}})$,

$$H_0^{(LDA)} = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \varepsilon_{\mathbf{k}}^{(LDA)} a_{\mathbf{k}, \sigma}^+ a_{\mathbf{k}, \sigma},$$

$$\tilde{\mathcal{H}} = 2 \sum_q \mathbf{S}_q \xi_{-q} + i \sum_q n_q \rho_{-q}, \quad (5a)$$

$$\xi_{-q} = \left(c \xi_{-q} - (U_{Co} - U_{Fe}) \sum_v \delta p_v \sum_\sigma \sigma \varepsilon_v \langle n_\sigma \rangle_0 e^{iqv} / 4 \right),$$

$$\rho_{-q} = \left(c \eta_{-q} - (U_{Co} - U_{Fe}) \sum_v \delta p_v \sum_\sigma \langle n_\sigma \rangle_0 e^{iqv} / 4 \right),$$

\mathbf{S}_q — Фурье-образы оператора вектора \mathbf{S}_v , $c = (UT)^{1/2}$, $U = (1-p)U_{Fe} + pU_{Co}$, $q = (\mathbf{q}, \omega_{2n})$, ω_{2n} — мацубаровская Бозе-частота.

Поскольку в модели хаотического сплава зарядовое упорядочение невозможно, а флуктуации зарядовой плотности ведут к большим флуктуациям энергии и, следовательно, маловероятны, постольку при расчете $Z(\xi \langle n_\sigma \rangle_0)$ слагаемыми, пропорциональными ρ_q с $q \neq 0$, в эффективном гамильтониане $\tilde{\mathcal{H}}$ можно пренебречь. В результате эффективный гамильтониан $\tilde{\mathcal{H}}$ переписывается к виду

$$\tilde{\mathcal{H}} = 2 \sum_q \mathbf{S}_q \xi_{-q} + i n_0 \rho_0.$$

Квантово-статистическое вычисление выражения для функционала свободной энергии $Z(\xi \langle n_\sigma \rangle_0)$, рассматриваемой задачи о фазовых переходах в киральных магнетиках с аномально большими периодами магнитной спиновой структуры, выполним на основе приближения однородных локальных полей [17]. Разлагая (5) по степеням $\tilde{\mathcal{H}}$ и проводя квантостатистическое усреднение, получаем ряд по степеням внутренних обменных и зарядовых полей, действующих на электроны, — ξ_{-q} и ρ_0 . Вершинные части ряда выражаются через функции Грина в приближениях LDA + U + SO (описываемом гамильтонианом $H_0^{(LDA)}$) и виртуального кристалла: $\varphi^{(l)}(q_1 \dots q_l) = T \sum_k G_{k+q_1}^{(0)} G_{k+q_1+q_2}^{(0)} \dots G_{k+\sum_i q_i}^{(0)} \delta_{\sum_i q_i, 0}$. В приближении однородных локальных полей они аппроксимируются выражением: $\varphi^{(l)}(q_1 \dots q_l) = \delta_{\sum_i q_i, 0} \varphi^{(l)}(0, \dots, 0) \times \prod_i \theta(q_i - qc)$. Однако слагаемые, соответствующие вершинным частям второго порядка, определяют (\mathbf{q}, ω) -зависимость обратного значения аномально в окрестности фазового перехода фактора обменного усиления D . Поэтому во втором порядке пренебрегать пространственно-временной неоднородностью нельзя. Последняя описывается фактором обменного усиления, аномально сильно зависящим от \mathbf{q} и ω в ферромагнитных и длиннопериодических спиновых структурах. В рамках (см., например, [18]) известной аппроксимации

функции Линдхарда ($\chi^{(0)}(\mathbf{q}, \omega)$), имеем

$$\chi^{(0)}(\mathbf{q}, \omega) = \chi^{(0)}(0, 0) + \chi^{(0)}(0, 0) \left(A(\mathbf{q}/k_F)^2 - iBU^{-1} \times \frac{\omega}{|\mathbf{q}/k_F|} \theta(T_0 |\mathbf{q}/k_F| - \omega) \right) \theta(2k_F - |\mathbf{q}|),$$

где $T_0 = V_F k_F$, V_V — скорость на поверхности Ферми, k_F — модуль вектора Ферми, $\theta(x)$ — θ -функция, коэффициенты A и B пропорциональны плотности электронных состояний на уровне Ферми и в случае $3d$ -переходных металлов и их соединений, имеют значения порядка 0.1 и 1 [18] соответственно.

Вычисления функциональных интегралов выполним в приближении метода наискорейшего спуска по переменным: ξ_0 , $\xi_{\pm q_0}$, ρ_0 , $|\xi_q^{(y)}|$ и $\varphi_q^{(y)} (= \arg \xi_q^{(y)})$, перевальные значения которых определяются условиями максимума подынтегрального выражения в (4).

Анализ выражения для статистической суммы (4) показывает, что имеется связь между перевальными значениями ξ — полей с намагниченностями $M_0 = U^{-1} \left(c \xi_0^{(z)} - U \sum_\sigma \sigma \langle n_\sigma \rangle_0 / 2 \right)$ и $\mathbf{M}_{q_0, m} = U^{-1} (c \xi_{q_0} - \mathbf{h}_{q_0})$ на векторах $\mathbf{q} = 0$ и $\pm \mathbf{q}_0$ соответственно, а также со спиновой мацубаровской функцией Грина — $\langle T_\tau \mathbf{S}_q \mathbf{S}_{-q} \rangle = (c/U)^2 (2|\xi_q|^2 - 1)$ и среднеквадратическим магнитным моментом на узле, определяемом значениями модуля намагниченности и амплитуды спиновых флуктуаций

$$m^2 \approx |\mathbf{M}_{q_0}|^2 + \langle m^2 \rangle, \quad (6)$$

$$\langle m^2 \rangle = (2\pi)^{-1} \sum_{\mathbf{q}(\neq \mathbf{q}_0)} \int_0^\infty (1 + 2f_B(\omega/T)) \text{Im} / T_\tau \mathbf{S}_{q, m} \mathbf{S}_{-q, m} d\omega + \frac{(U_{Co} - U_{Fe})^2}{4U^2} \left(\sum_\sigma \sigma \langle n_\sigma \rangle_0 \right)^2 N_0^{-1} \sum_v \delta p_v^2, \quad (7)$$

где $f_B(\omega/T)$ — функция Бозе.

Перевальное значение $\rho_q = 0$, а ρ_0 определяется условием

$$c \rho_0 = 2^{-1} U \left(n - \sum_\sigma \langle n_\sigma \rangle_0 \right),$$

где n — заполнение t_0 -зоны, плотность электронных состояний в которой перенормирована флуктуациями электронной спиновой плотности

$$g(\varepsilon) = 2^{-1} \sum_{\alpha=\pm 1} g_\alpha(\varepsilon),$$

$$g_\alpha(\varepsilon) = 2^{-1} \sum_\sigma g_\sigma^{(LSDA)}(\varepsilon - c\rho_0 + \sigma\Delta + \alpha Um). \quad (8)$$

При этом химический потенциал (μ) определяется исходя из условия

$$x = \int f(\varepsilon - \mu) g(\varepsilon) d\varepsilon,$$

$f(\varepsilon - \mu)$ — функция Ферми–Дирака.

3. Уравнение магнитного состояния

Уравнения магнитного состояния, получаемые из условий минимума (4) по однородной и неоднородной намагниченности, содержат эффекты, связанные с магнитными флуктуациями

$$\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0}(D^{-1} + X(\mathbf{q}_0, 0)) + \kappa \mathbf{M}_{-\mathbf{q}_0}(\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0})^2 = (1 - D^{-1} - X(\mathbf{q}_0, 0)) \mathbf{h}_{\mathbf{q}_0}^{(D)}, \quad (9)$$

$$M_0 D^{-1} = -\Delta (D^{-1} - \kappa \langle m^2 \rangle / 3), \quad (10)$$

где $\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0} (= \mathbf{M}_{-\mathbf{q}_0}^*) = 2^{-1/2} (\mathbf{i} M_{\mathbf{q}_0}^{(x)} + \mathbf{j} M_{\mathbf{q}_0}^{(y)})$, \mathbf{i} и \mathbf{j} — орты, лежащие в геликоидальной плоскости, $D^{-1} = 1 - U\chi_{\perp} + \kappa \langle m^2 \rangle / 3$ — фактор обменного усиления однородной магнитной восприимчивости, $\kappa(U/m^2)[\chi_{\perp} - \chi_{\parallel}]$ — коэффициент межмодовой связи, $\chi_{\perp} = (2Um)^{-1}\Delta n$ и $\chi_{\parallel} = 2 \left(\sum_{\alpha=\pm 1} g_{\alpha}(\mu) \right)^{-1} \prod_{\alpha=\pm 1} g_{\alpha}(\mu)$, поперечная и продольная восприимчивости соответственно, $\Delta n = \sum_{\alpha=\pm 1} \alpha \int_{-\infty}^{\infty} g_{\alpha}(\varepsilon) f(\varepsilon - \mu) d\varepsilon$ — разность чисел заполнения состояний с $\alpha = \pm 1$.

Известная из LSDA + U + SO-расчетов спиновая система является ферромагнитной, а электронная структура представляет собой расщепленные по направлениям спина спин-поляризованные подзоны с раздвижкой пропорциональной намагниченности [10,19]. Однако учет ДМ-взаимодействия „закручивает“ спины, и однородная намагниченность исчезает. Анализ (5, 8, 9) показывает, что в этом случае $M_0 = 0$ и раздвижка спин-поляризованных подзон отсутствует, хотя в исходной LSDA-модели $\Delta \neq 0$. При этом согласно (9) в основном состоянии ($T = 0$) возникает среднее значение модуля локального магнитного момента

$$(|M_{\mathbf{q}_0}|^2 + \langle m^2 \rangle)^{1/2} = 2^{-1} \sum_{\alpha=\pm 1} \alpha \int_{-\infty}^{\infty} g_{\alpha}(\varepsilon) f(\varepsilon - \mu) d\varepsilon,$$

который при малых значениях $\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0} (\sim \mathbf{h}_{-\mathbf{q}_0}^{(D)})$, связан с флуктуациями магнитных моментов на узлах занятых железом и кобальтом (6). Наличие таковых позволяет согласовать экспериментальные данные по магнитным моментам с результатами наших расчетов (рис. 1).

При этом, несмотря на ненулевые значения $\langle n_{\sigma} \rangle_0$, в рассматриваемом случае ферромагнитного геликоида отсутствует остаточная однородная намагниченность, а однородная магнитная восприимчивость, которую можно получить дифференцируя (8), имеет вид

$$\chi = 2U^{-1} \left[(X(\mathbf{q}_0, 0) + \kappa |M_{\mathbf{q}_0}|^2)^{-1} - 1 \right]. \quad (11)$$

Как показывают численные расчеты величина амплитуды спиновых флуктуаций (7) в приближении хаотиче-

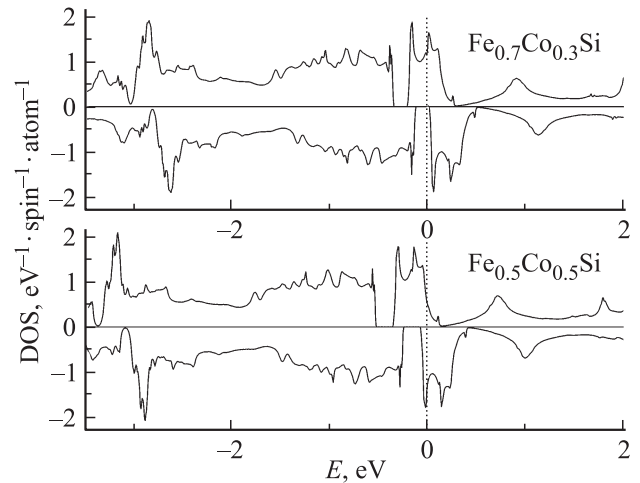


Рис. 1. Плотность электронных состояний для основного состояния $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ в LSDA + U + SO. Положение химического потенциала совпадает с началом отсчета энергии. Параметры первопринципного моделирования электронной структуры: величина хаббардовского отталкивания $U = 0.78$ и 0.795 eV для сплавов $\text{Fe}_{0.3}\text{Co}_{0.7}\text{Si}$ и $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ соответственно; параметр хундовского обменного взаимодействия $J = 0.428$ и 0.435 eV, для сплавов $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ с содержанием кобальта $x = 0.3, 0.5$ соответственно.

ского сплава аппроксимируется выражением

$$\langle m^2 \rangle = (3/4)B(T/U)^2(D^{-1} + 2\kappa M_S^2)^{-1} \times (D^{-1} + 2\kappa M_S^2 + A)^{-1} + \frac{(U_{\text{Co}} - U_{\text{Fe}})^2}{4U^2} \sum_{\sigma} \sigma \langle n_{\sigma} \rangle_0 x(1-x). \quad (12)$$

4. Решения, соответствующие модели Янсена–Бака ($T < T_C$)

Решения уравнения (8) при $\kappa > 0$ соответствуют ферромагнитному геликоиду с фиксированным вектором амплитуды геликоидальной структуры. В таком киральном магнетике

$$M_{\mathbf{q}_0}^{(x)} = M_S, \quad M_{\mathbf{q}_0}^{(y)} = -iM_S, \quad N_0^{-1} \sum_{\nu} M_{\nu}^{(y)} = M_S,$$

где $M_S = (2\kappa)^{-1/2} ((D^{-1} + X(\mathbf{q}_0, 0))^2 - (d\mathbf{q}_0/U)^2)^{1/4}$, а волновой вектор гелимагнитного упорядочения \mathbf{q}_0 определяется условием максимума модуля вектора амплитуды неоднородной намагниченности и удовлетворяет равенству $|\mathbf{q}_0| \approx d/2UA$. При этом направление вектора \mathbf{q}_0 и вращения спинов определяются знаком параметра ДМ-взаимодействия.

Результаты расчета неоднородной намагниченности представлены на рис. 2. Там же представлены результаты расчета однородной магнитной восприимчивости

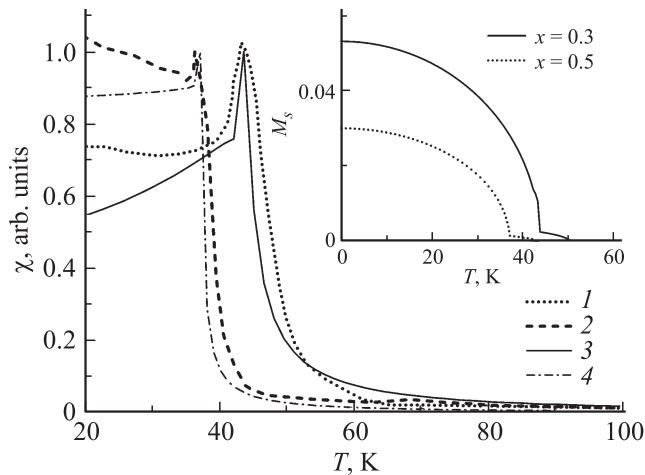


Рис. 2. Температурная зависимость однородной магнитной восприимчивости соединений $Fe_{1-x}Co_xSi$: 1, 2 — экспериментальные данные для $Fe_{0.7}Co_{0.3}Si$ [9] и $Fe_{0.5}Co_{0.5}Si$ [4] соответственно; 3, 4 — расчет в настоящей работе по формуле (12) для $Fe_{0.7}Co_{0.3}Si$ и $Fe_{0.5}Co_{0.5}Si$ соответственно. На вставке: температурная зависимость модуля амплитуды спиновой плотности для $Fe_{1-x}Co_xSi$ ($x = 0.3, 0.5$).

по формуле (13), которые хорошо описывают экспериментально наблюдаемую зависимость $\chi(T)$ вблизи температуры T_C (рис. 2).

5. Киральные флуктуации ($T_C < T < T_S$)

В условиях, когда $\kappa < 0$, геликоидальное ферромагнитное состояние с фиксированной по направлению осью квантования и вектором неоднородной намагниченности \mathbf{M}_{q_0} исчезает. При этом сохраняются ферромагнитные спиновые корреляции, радиус которых определяется выражением

$$R_C = k_F^{-1} A^{1/2} (X(\mathbf{q}_0, 0) + \kappa |\mathbf{M}_{q_0}|^2)^{-1/2} \sim (U\chi)^{1/2}. \quad (13)$$

Согласно развиваемой численной модели при температуре T_C радиус спиновых корреляций равен периоду геликоидальной спирали, а при $T > T_C$ убывает с возрастанием температуры (рис. 3).

В результате возникает магнитное состояние с $\kappa < 0$ и $D^{-1} > 0$, причем

$$M_v^{(x)} = M_S \cos(\mathbf{q}_0 \mathbf{v} + \phi) \quad \text{и} \quad M_v^{(y)} = -M_S \sin(\mathbf{q}_0 \mathbf{v} + \phi), \quad (14)$$

где фаза ϕ меняется стохастически (вследствие исчезновения ферромагнитной оси квантования). Последнее означает, что

$$N_0^{-1} \sum_v M_v^{(y)} = (2\pi)^{-1} \int_0^{2\pi} M_v^{(y)} d\phi = 0,$$

и отвечает возникновению киральных флуктуаций вектора спиновой плотности \mathbf{M}_v ,

$$N_0^{-1} \sum_v \langle S_v^{(y)} \rangle^2 = (2\pi)^{-1} \int_0^{2\pi} M_v^{(y)2} d\phi = M_S^2.$$

Решение уравнения магнитного состояния допускает возникновение фиксированных значений фазы в пределах радиуса корреляций. При условиях флуктуаций стохастических фаз за его пределами.

Модуль амплитуды спиновой плотности на векторе геликоидального упорядочения

$$M_S = \langle m^2 \rangle_{T_C}^{1/2} (1 - (T/T_S)^2)^{1/2},$$

$$T_S = |\kappa|^{-1} B^{-1} U \left(\left| D \left(\langle m^2 \rangle_{T_C}^{1/2} \right)^{-1} - dq_0/U \right| \right)^{1/2}. \quad (15)$$

При этом отличие температур T_C и T_S оказывается обусловленным различием параметров хаббардовского взаимодействия на узлах, занятых атомами Fe и Co,

$$T_S^2 = T_C^2 + \left(\frac{U_{Co} - U_{Fe}}{2U} \sum_{\sigma} \sigma \langle n_{\sigma} \rangle_0 \right)^2 x(1-x). \quad (16)$$

Отличие потенциалов железа и кобальта от потенциала виртуального кристалла U приводит к локальной намагниченности выше T_C . При значении температуры равном T_S локальная намагниченность исчезает, причем расчетное значение радиуса корреляций примерно равно 0.6λ (согласно данным малоуглового рассеяния нейтронов — 0.7λ), что отвечает флуктуационному ближнему порядку.

Таким образом, рассматриваемый магнитный переход является затянутым по температуре. При температуре T_C исчезает фиксированное направление ферромагнитной оси квантования, а при T_S исчезает локальная намагниченность.

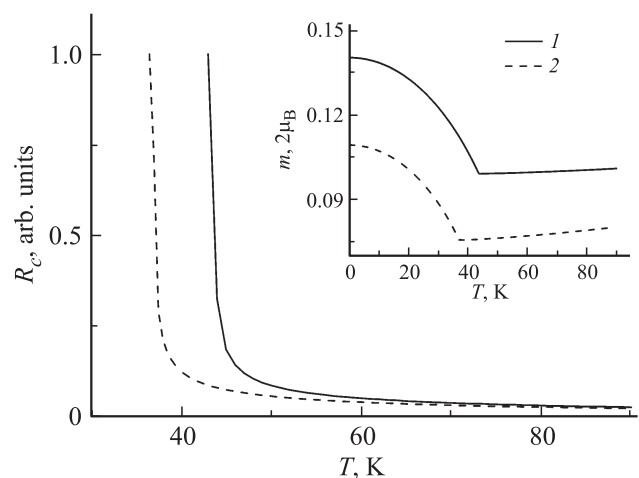


Рис. 3. Температурная зависимость радиуса корреляции, рассчитанного в настоящей работе; на вставке: температурная зависимость локального магнитного момента для сплавов $Fe_{1-x}Co_xSi$: 1 — $x = 0.3$, 2 — $x = 0.5$.

6. Теплоемкость и тепловое расширение

Вблизи температур магнитного перехода T_C и T_S электронные и магнитные вклады в свободную энергию, согласно формулам (4)–(7) перенормированы за счет расщепления электронных спектров во флуктуирующих обменных полях

$$F = -T \ln Z = F_{el} + F_{mag}, \quad (17)$$

где

$$R_{el} = T \sum_m \int_{-\infty}^{\infty} g(\varepsilon) \ln(1 - f(\varepsilon - \mu)) d\varepsilon - \mu N,$$

$$F_{mag} = \sum_q (1 + X_q) |M_q|^2 + \sum_{\gamma} \left(D^{-1} + 2\kappa |M_{q_0}^{(\gamma)}| \right) \langle m^2 \rangle_T$$

$$+ (2\pi)^{-1} \sum_{q(\neq q_0), \gamma} \int_0^{\infty} (2f_B(\Omega/T))$$

$$\times \text{Im} \left[\ln(D^{-1} + 2\kappa |M_{q_0}^{(\gamma)}| + X_q(\omega)) \right] d\omega.$$

В соответствии с термодинамическим определением $(C_V = T(\partial^2 T \ln Z / \partial T^2))_V$ электронный вклад в теплоемкость при постоянном объеме определяется выражением

$$C_V = \frac{\pi^2}{3} g(\mu) T + U (D^{-1} + A(a/\lambda)^2 + A) \frac{d\langle m^2 \rangle}{dT}$$

$$- U\kappa (M_S^2 + \langle m^2 \rangle / 3) \frac{dm^2}{dT}.$$

Поскольку в условиях термодинамической неустойчивости ферромагнитного упорядочения ($T_C < T < T_S$) и температурной ее окрестности значения коэффициента межмодовой связи малы ($\kappa(T_C) = 0$ и $\kappa(T_S) \approx 0^1$), а $|D^{-1} + A(a/\lambda)^2| \sim d/U \ll A$, постольку электронный вклад в теплоемкость не проявляет аномалий в точках T_C и T_S (см. вставка на рис. 4) — $C_V \approx UAd\langle m^2 \rangle/dT$.

Учет ангармонизма, связанного с тепловым расширением, в выражении для теплоемкости при постоянном давлении (см. вставка к рис. 4)

$$C_p = C_V + K\beta(T)(V(T) - V(0))/V(0)$$

здесь не рассматривается, а на эксперименте не проявляется, вследствие того, что относительное изменение объема является не только малым, но и непрерывным. Поэтому в эксперименте [4,6] какая-либо корреляция зависимостей $C(T)$ и $\beta(T)$ отсутствует.

Для определения ОКТР необходимо рассмотреть магнитообъемный эффект. Давление, возникающее при изменении объема,

$$P = K\omega = -(\partial F / \partial V)_T, \quad \omega = \Delta V / V,$$

¹ В рассматриваемой численной модели плотности электронных состояний, повторное обращение в нуль коэффициента межмодовой связи κ имеет место при температуре больше T_S на 5 К.

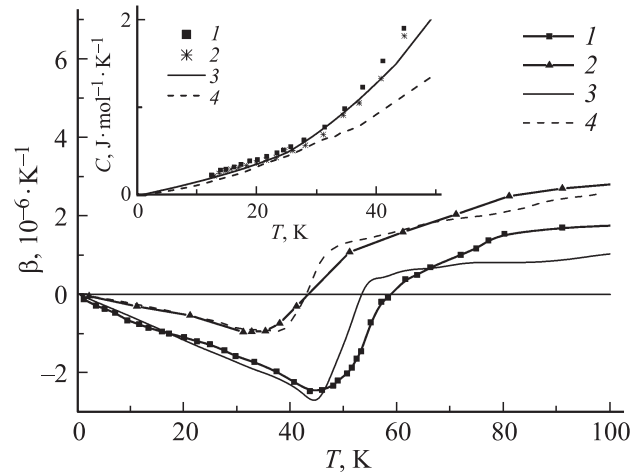


Рис. 4. Температурная зависимость объемного коэффициента теплового расширения сплавов $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$: 1, 2 — экспериментальные данные для $\text{Fe}_{0.7}\text{Co}_{0.3}\text{Si}$ и $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ [6] соответственно; 3, 4 — расчет в настоящей работе для $\text{Fe}_{0.7}\text{Co}_{0.3}\text{Si}$ и $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ соответственно. На вставке — температурная зависимость теплоемкости соединений $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$: 1, 2 — экспериментальные данные для соединений $\text{Fe}_{0.7}\text{Co}_{0.3}\text{Si}$ и $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ [20] соответственно; 3, 4 — расчет в настоящей работе для $\text{Fe}_{0.7}\text{Co}_{0.3}\text{Si}$ и $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$.

может быть определено в модели соответственных состояний [21], согласно которой плотность электронных состояний

$$g_a(\varepsilon) = 2^{-1}(W/W_0)^{-1}$$

$$\times \sum_{\sigma} g_{\sigma}^{(\text{LSDA})}(\varepsilon - c\rho_0 + \sigma\Delta + \alpha UmW_0/W), \quad (18)$$

где относительная ширина зоны $W/W_0 \sim (V/V_0)^{-n/3}$ ($n = 5$ для d -электронов), V_0 и W_0 — объем кристалла и ширина зоны в отсутствии теплового расширения, K — коэффициент изотермической сжимаемости.

Тогда, используя термодинамическое условие минимума свободной энергии для относительного изменения объема и условия перевала, находим ОКТР ($\beta = \partial\omega/\partial T$)

$$\beta = (K^{-1} d \ln W / d \ln V) \left[2 \frac{\pi^2}{3} g(\mu) T + U \left(2\kappa \frac{dM_S^2}{dT} \langle m^2 \rangle \right. \right.$$

$$\left. \left. + A(a/\lambda)^2 \frac{d\langle m^2 \rangle}{dT} + (\kappa m^2 + 2U\tilde{g}(\mu)) \left(\frac{dm^2}{dT} \right) \right) \right], \quad (19)$$

в котором содержится магнитный вклад, величина которого определяется первыми производными по температуре от локальной намагниченности, амплитуды спиновых флуктуаций и среднеквадратического спинового магнитного момента. При этом величина ОКТР является отрицательной при $T < T_S$ и меняет знак при переходе из киральной в парамагнитную вследствие исчезновения модуля локальной намагниченности на узле.

Изменение знака коэффициента межмодовой связи κ в точке T_C приводит к формированию экстремума на зависимости $\beta(T)$,² который также как и смена знака этой зависимости в точке T_C представлены на рис. 4 и согласуются с экспериментальными данными. Отметим, что магнитный вклад оказывается значительно больше вклада фермиевских возбуждений (согласно (19) в U/T -раз).

7. Заключение

В настоящей работе показано, что магнитный переход в геликоидальных ферромагнетиках $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ оказывается затянутым по температуре. Это связано с возникновением киральных флуктуаций, вследствие исчезновения фиксированной ферромагнитной оси квантования (катастрофа модели Бака–Янсена). При этом локальная намагниченность на узле не исчезает, что становится возможным вследствие различия кулоновских потенциалов Fe и Co на узлах. Похожая, но иная по природе ситуация, имеет место в MnSi , где ферромагнитная ось квантования исчезает вследствие „скачка“ амплитуды нулевых спиновых флуктуаций [13]. При температуре T_S локальная намагниченность исчезает вследствие термодинамических спиновых флуктуаций. При температуре T_C в $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ (в отличие от MnSi [5]) температурные скачки теплоемкости не имеют место, поскольку спиновые флуктуации, связанные со стохастическими флуктуациями кулоновских потенциалов Fe и Co не изменяются с температурой. Магнитная восприимчивость и ОКТР $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ в возникновении киральных флуктуаций (вблизи T_C) обнаруживают температурные экстремумы, связанные с изменением знака коэффициента межмодовой связи κ , который определяет устойчивость ферромагнитных решений в уравнении магнитного состояния (9)–(10).

Фазовый магнитный переход в $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ оказывается затянутым по температуре и завершается исчезновением при температуре T_S ($> T_C$) локальной намагниченности и киральных флуктуаций. Последнее сопровождается изменением знака ОКТР, поскольку в парамагнитной области сохраняются термодинамические спиновые флуктуации (температурно-индуцированные локальные магнитные моменты), амплитуда которых растет с температурой.

Список литературы

- [1] J. Beille, J. Voiron, F. Towfiq, M. Roth, Z.Y. Zhang. *J. Phys. F* **11**, 2153 (1981).
- [2] P. Bak, M.H. Jensen. *J. Phys. C* **13**, L881 (1980).
- [3] С.В. Григорьев, В.А. Дядькин, С.В. Малеев, D. Menzel, J. Schoenes, D. Lamago, E.B. Москвин, H. Eckerlebe. *ФТТ* **52**, 852 (2010).

² В пренебрежение различием потенциалов Хаббардовского взаимодействия железа и кобальта на зависимости $\beta(T)$ возникает скачок при $T = T_C$.

- [4] A. Bauer, M. Garst, C. Pfleiderer. *Phys. Rev. B* **93**, 235144 (2016).
- [5] S.M. Stishov, A.E. Petrova, S. Khasanov, G.Kh. Panova, A.A. Shikov, J.C. Lashley, D. Wu, T.A. Lograsso. *JETP* **106**, 888 (2008).
- [6] П.В. Гельд, А.А. Повзнер, С.В. Кортов, Р.П. Кренцис. *ДАН СССР* **297**, 1359 (1987).
- [7] V.A. Dyadkin, S.V. Grigoriev, E.V. Moskvina, S.V. Maleyev, D. Menzel, J. Schoenes, H. Eckerlebe. *Physica B* **404**, 2520 (2009).
- [8] L.J. Bannenberg, K. Kakurai, P. Falus, E. Lelièvre-Berna, R. Dalgliesh, C.D. Dewhurst, F. Qian, Y. Onose, Y. Endoh, Y. Tokura, C. Pappas. *Phys. Rev. B* **95**, 144433 (2017).
- [9] T.Y. Ou-Yang, G.J. Shu, C.D. Hu, F.C. Chou. *J. Appl. Phys.* **117**, 123903 (2015).
- [10] X.Z. Yu, N. Kanazawa, Y. Onose, K. Kimoto, W.Z. Zhang, S. Ishiwata, Y. Matsui, Y. Tokura. *Nature Mater.* **10**, 106 (2011).
- [11] V.V. Mazurenko, A.O. Shorikov, A.V. Lukoyanov, K. Kharlov, E. Gorelov, A.I. Lichtenstein, V.I. Anisimov. *Phys. Rev. B* **81**, 125131 (2010).
- [12] K.V. Shanavas, S. Satpathy. *Phys. Rev. B* **93**, 195101 (2016).
- [13] А.А. Повзнер, А.Г. Волков, Т.А. Ноговицына. *ФТТ* **59**, 1261 (2017).
- [14] M.M. Steiner, R.C. Albers, L.J. Sham. *Phys. Rev. B* **45**, 13272 (2016).
- [15] Т. Мория. *УФН* **135**, 117 (1981).
- [16] J. Hubbard. *Proc. Roy. Soc. A* **276**, 238 (1963).
- [17] J.A. Hertz, M.A. Klenin. *Phys. Rev. B* **10**, 1084 (1974).
- [18] I.E. Dzyaloshinskii, P.S. Kondratenko. *Sov. Phys. JETP* **43**, 1036 (1976).
- [19] Hu Zhi-Hui, He Wei, Sun Young, Cheng Zhao-Hua. *Chinese Phys.* **16**, 3863 (2007).
- [20] П.В. Гельд, А.А. Повзнер, С.В. Кортов, В.Н. Сафонов. *ДАН СССР* **289**, 351 (1986).
- [21] V. Heine. *Phys. Rev.* **153**, 673 (1967).