

УДК 538.114

НАМАГНИЧЕННОСТЬ И РАЗЛОЖЕНИЕ ГИНЗБУРГА—ЛАНДАУ В ФЕРРОМАГНИТНЫХ МЕТАЛЛАХ

А. А. Сивенцев, Ю. П. Ирхин, Е. В. Розенфельд

Рассмотрена зависимость намагниченности $M(T, H)$ (T — температура, H — внешнее поле) в ферромагнитных металлах при наличии резкой зависимости плотности электронных состояний от энергии. Показано существование особенностей функции $M(T, H)$, обусловленных особенностями плотности состояний. В этом случае могут возникать ограничения области применимости разложения Гинзбурга—Ландау: при намагниченностях, больших некоторого граничного значения M_c , оно становится неприменимым. Конкретные расчеты проведены для никеля. Согласно с экспериментом удается добиться при учете зависящей от M деформации спиновых подполос, действительно имеющей место в зонных расчетах.

1. Одной из актуальных проблем микротемпературы ферромагнетизма металлов является вычисление основных характеристик их магнитных свойств на основе реальной электронной структуры. В настоящее время обсуждается несколько механизмов, определяющих термодинамику магнетизма. Основными из них являются спиновые и зарядовые флуктуации и магнитоупругое взаимодействие. Важную роль при этом может играть структура плотности электронных состояний $g(\epsilon)$ (наличие особенностей или узких пиков вблизи энергии Ферми ϵ_F). Так, ранее [1] нами было показано, что температурная зависимость парамагнитной восприимчивости никеля при $T > T_c$ может быть объяснена при учете указанных особенностей без привлечения существенного вклада от механизма спиновых флуктуаций. Аналогичное рассмотрение проводится нами в настоящей работе для намагниченности при $T < T_c$. Решение вопроса о доминирующих механизмах в конкретных ферромагнитных металлах связано с количественным анализом их вкладов в различные магнитные свойства. Здесь сделана попытка такого анализа для температурной зависимости намагниченности $M(T)$ в никеле, а также коэффициентов $A(T)$ и $B(T)$ уравнения типа Гинзбурга—Ландау

$$H = A(T)M + B(T)M^3. \quad (1)$$

Далее для краткости будем называть коэффициенты $A(T)$ и $B(T)$ коэффициентами Гинзбурга—Ландау.

Возможность теоретического расчета этих коэффициентов представляет особый интерес в связи с имеющимися подробными измерениями температурных зависимостей $A(T)$ и $B(T)$ в никеле [2].

Явный вид коэффициентов ряда (1) получается в теории зонного ферромагнетизма Стонера. Они рассчитаны до слагаемого $\sim M^7$ в работе [3]; в частности, для $A(T)$ и $B(T)$ получено

$$\begin{aligned} A(T) &= (2\mu_B^2 N_{01})^{-1} - \alpha, \\ B(T) &= (48\mu_B^4 N_{01}^5)^{-1} (3N_{02}^3 - N_{01}N_{03}), \end{aligned} \quad (2)$$

где α — коэффициент молекулярного поля, μ_B — магнетон Бора,

$$N_{ij} = \int g(\epsilon) \epsilon^2 \frac{\partial^j}{\partial \zeta^j} f(\epsilon - \zeta) d\epsilon. \quad (3)$$

Здесь $g(\epsilon)$ — плотность электронных состояний; ζ — химпотенциал, определяемый уравнением

$$2N_{00} \equiv 2 \int g(\epsilon) f(\epsilon - \zeta) d\epsilon = N, \quad (4)$$

где N — число электронов на атом. Как показано в [4], интегралы (3) с функцией $g(\epsilon)$, резко зависящей от энергии ϵ , как это имеет место в никеле, могут быть взяты аналитически, если $g(\epsilon)$ представить в виде ломаной линии. В [1] была вычислена восприимчивость никеля $\chi_0 = 2\mu_B^2 N_{01}$, причем показано, что при расчете достаточно смоделировать лишь пик, находящийся вблизи уровня Ферми, а форма остальной части $g(\epsilon)$ не оказывает влияния ни на температурный ход χ_0 , ни на движение химпотенциала. То же можно сказать и об остальных интегралах N_{ij} (при $j > 1$). Приведем выражения для тех из них, которые входят в (2)

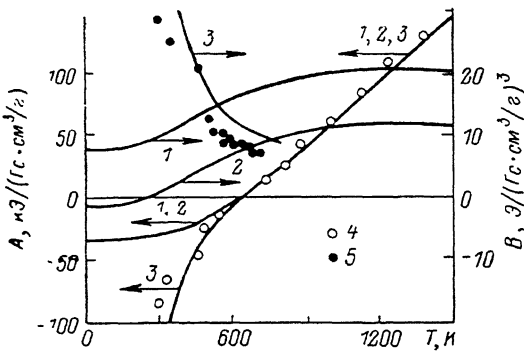


Рис. 1. Температурный ход коэффициентов $A(T)$ и $B(T)$.

Кривые 1 получены из «чистой» теории Стонера (формулы (2)), кривая 2 соответствует формуле (11) для $B(T)$, кривые 3 получены по методике [2] из расчетных кривых $M(T, H)$.

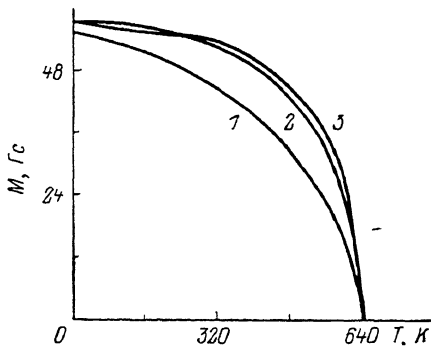


Рис. 2. Температурный ход намагниченности.

Кривая 1 соответствует «чистой» теории Стонера; кривая 2 получена с учетом зависимости $g(\epsilon)$ от M вида $g_\sigma(\epsilon, M) = (1 + \sigma \nu M^2) g[\epsilon(1 + \nu \sigma M^2)]$, где νM^2 при $T=0$ составляет 0.01; 3 — экспериментальная кривая из [2].

$$N_{01} = g(\zeta) + \sum_p \delta g'_p T \ln [1 + \exp(-|x_p|)],$$

$$N_{02} = g'(\zeta) + \sum_p \delta g'_p [1 + \exp|x_p|]^{-1} \operatorname{sgn}(x_p),$$

$$N_{03} = \frac{1}{T} \sum_p \delta g'_p \exp(x_p) [1 + \exp(x_p)]^{-2}, \quad (5)$$

где $x_p = (\epsilon_p - \zeta)/T$; ϵ_p — точки излома $g(\epsilon)$; $\delta g'_p$ — скачки производной $g'(\epsilon)$ в этих точках. Зависимости $A(T)$ и $B(T)$, полученные по формулам (2) при учете (5) с использованием модельной $g(\epsilon)$ из [1] (на основе данных Шимицу), изображены на рис. 1. Точки — экспериментальные результаты из [2] для $A(T)$ (4) и $B(T)$ (5).

Из этого рисунка видно, что кривая $A(T)$ хорошо совпадает с экспериментом лишь в области выше T_c , а $B(T)$ отличается от эксперимента как по величине, так и по характеру зависимости (растет с температурой, в то время как экспериментальная $B(T)$ убывает). Прежде чем решать вопрос о причинах этого расхождения, посмотрим, насколько близкую зависимость $M(T)$ к экспериментальной дает теория Стонера для нашей плотности состояний.

Заметим при этом, что вблизи T_c имеет место формула для спонтанной намагниченности

$$M(T) = \sqrt{-A(T)/B(T)}. \quad (6)$$

Поскольку $A(T)$ по модулю меньше экспериментальной, а $B(T)$, наоборот, больше, то $M(T)$, рассчитанная в тех же приближениях, что

A и B , должна вблизи T_c обращаться в нуль более полого, чем $M_{\text{экс}}(T)$. Так и есть на самом деле.

На рис. 2 кривая I соответствует модельной $g(\epsilon)$ из [1] с обменным расщеплением при $T=0$, равным экспериментальной величине 0.31 эВ. Она получена в результате численного решения системы трех уравнений

$$\begin{aligned} N_{00}^+ + N_{00}^- &= N, \quad \mu_B(N_{00}^+ - N_{00}^-) = M, \\ \Delta &\equiv \zeta_+ - \zeta_- = 2\mu_B(H + \alpha M), \end{aligned} \quad (7)-(9)$$

где $N_{ij}^\pm = N_{ij}(\zeta_\pm)$; ζ_\pm — химпотенциалы подполос со спином «вверх» и «вниз». Первое из уравнений есть условие постоянства числа электронов, третье — обычное уравнение молекулярного поля Вейсса. Второе уравнение выражает равенство спонтанной намагниченности числу нескомпенсированных спинов, умноженному на магнетон Бора.

Слишком пологий ход по сравнению с экспериментом, по-видимому, является общим свойством зависимостей $M(T)$, получаемых в теории Стонера. Во всяком случае представляется возможным объяснить несовпадение $A(T)$ и $B(T)$ с экспериментом [2] принципиальной невозможностью правильно описать ферромагнитный газ электронов классической теорией Стонера. Существует, однако, вторая возможная причина несовпадения — плохая сходимость ряда (1).

2. Попытаемся выяснить, какая из этих двух причин является главной. Для этого нужно прежде всего попробовать улучшить $M_{\text{теор}}(T)$ и посмотреть, как изменятся при этом $A(T)$ и $B(T)$. Попытки такого улучшения предпринимались в [5, 6] путем введения зависимости α от M в виде ряда по M^2 . В [5] было показано, что учет членов до M^4 позволяет для реальной плотности состояний получить точное совпадение с экспериментом, но лишь в интервале температур ~ 150 К вблизи T_c . Авторы [6], взяв прямоугольную плотность состояний, воспроизвели $M_{\text{экс}}(T)$ путем подбора коэффициентов при четырех членах ряда $\alpha(M)$.

Введение зависимости вида $\alpha(M) = \alpha + \beta M^2$ позволяет получить зависимость $M(T)$, довольно близкую к $M_{\text{экс}}(T)$ во всей ферромагнитной области. Но для этого приходится допустить, что $\alpha(M)$, т. е. обменный интеграл, меняется на интервале температур от 0 до T_c на $\sim 6\%$. Однако непосредственный зонный расчет $\alpha(T)$ в работе [7] не показал скольнибудь значительной температурной зависимости α . Мы предлагаем вместо учета $\alpha(M)$ рассмотреть слабую зависимость от M плотности состояний $g(\epsilon)$. На самом деле, как видно, в частности, из различных спин-поляризованных расчетов (например, [8]), появление намагниченности связано не только с обменным расщеплением подполос, но также с возникновением различий в плотностях состояний подполос, причем добавка к намагниченности при $T=0$ имеет в никеле величину порядка нескольких процентов. К сожалению, расчет температурных зависимостей $g_\sigma(\epsilon, T)$ для подполос с направлением спина $\sigma = \pm 1$ связан с определенными трудностями, и в литературе таких данных для $T \neq 0$, насколько нам известно, не имеется. Поэтому положим в простейшем приближении, что деформация полосы слабо зависит от намагниченности и сводится к масштабным преобразованиям с сохранением площади под кривой $g(\epsilon)$

$$g_\sigma(\epsilon, M) = (1 + \sigma\psi(M)) g[\epsilon(1 + \sigma\psi(M))], \quad (10)$$

причем $\psi(M) \ll 1$.¹ Такой выбор $g_\sigma(\epsilon, M)$ соответствует наиболее характерному различию между плотностями состояний в подполосах: обычно одна из кривых $g_\sigma(\epsilon)$ несколько больше по амплитуде, но ее ширина меньше, так что площади под кривыми одинаковы.

¹ При введении такой деформации возникает вопрос выбора начала отсчета ϵ (т. е. центра деформации). Мы предполагаем, что энергия обменного взаимодействия полностью учтена слагаемым $-\alpha M^2/2$ в свободной энергии; это соответствует помещению центра деформации в центр тяжести электронной подполосы $\epsilon_{\text{ц.т}} = \int g(\epsilon) d\epsilon / \int g(\epsilon) d\epsilon$.

Чтобы получить хорошее согласие с экспериментом, достаточно взять $\psi(M) = \nu M^3$. (Линейное по M слагаемое почти не меняет формы зависимости $M(T)/M(0)$, но приводит к сдвигу T_c). Величина ν была взята такой, чтобы при $T=0$ экспериментальное значение расщепления давало экспериментальное значение M_0 ($\psi(M)$ при этом оказалась равна 1%). Результат изображен на рис. 2, 3. Получается, что учет деформации подполос позволяет достичь хорошего совпадения T -зависимости спонтанной намагниченности с экспериментальной. То же можно сказать и о зависимости M от внешнего магнитного поля: на рис. 3 приведены расчетные кривые $M(H)$ вместе с экспериментальными точками работы [2].

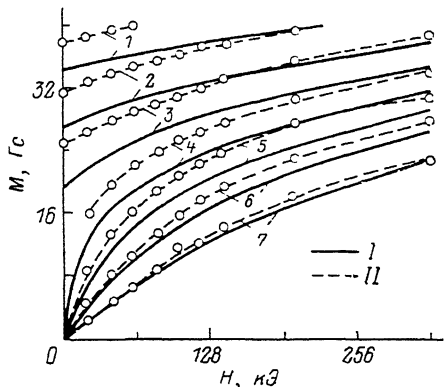


Рис. 3. Зависимость намагниченности от внешнего магнитного поля.

I — теоретические зависимости (с учетом деформации подполос), II — результаты измерений [2]. T, K : 1 — 546, 2 — 583, 3 — 608, 4 — 633, 5 — 649, 6 — 668, 7 — 693.

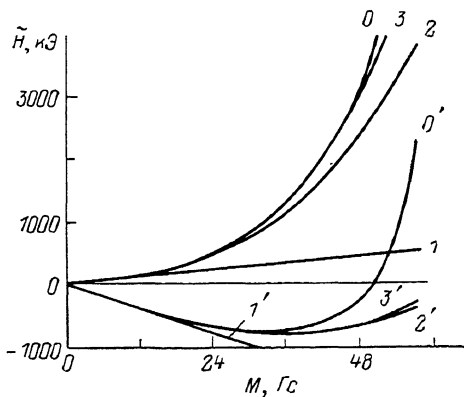


Рис. 4. Сходимость разложения $\tilde{H}(M)$ в ряд.

Из рис. 2 видно, что вклад от деформации, составляющий при $T=0$ несколько процентов, значительно возрастает с ростом температуры (до нескольких десятков процентов). При этом характер вклада существенно зависит от того, какой степени M он пропорционален. В частности, если это первая степень M , то вклад практически приводит лишь к изменению T_c , а вклад более высокой степени изменяет только форму кривой $M(T)$, причем последний, не меняя T_c и слабо меняя M при $T=0$, оказывает влияние в основном на форму $M(T)$ вблизи T_c . Это влияние оказывается тем большим, чем больше величина dM/dT (ее неограниченный рост при $T \rightarrow T_c$ означает возрастание чувствительности системы к изменениям молекулярного поля).

3. Рассмотрим влияние деформации подполос на коэффициенты из (1). Ясно, что $A(T)$ при этом не изменяется. Если $\psi(M) = \nu M^3$, то $B(T)$ принимает вид

$$B_T(T) = B(T) - \nu N_{11} / \mu_B N_{01}. \quad (11)$$

Зависимость (11) изображена на рис. 1 кривой 2.²

Поскольку теория теперь хорошо воспроизводит экспериментальные кривые $M(T, H)$, следовало бы ожидать также хорошего совпадения с экспериментом коэффициентов Гинзбурга—Ландау. Однако мы видим, что после введения поправок картина практически не улучшилась. Интересно, однако, что если определять $A(T)$ и $B(T)$ из теоретической кривой $M(T, H)$ так же, как это делалось в [2] с экспериментальной ($B(T)$ определялось как наклон графика Арро, т. е. графика H/M от M^2 , а $A(T)$ —

² $B(T)$ по формуле (11) меняет знак при $T \sim 200 K$. Однако это не означает возникновения особенности $M(T)$, поскольку, как показано ниже, в этой области температур формула (6) неприменима.

как ордината точки пересечения этого графика с осью $M^2=0$, то мы получим зависимости, близкие к результатам [2]. Они изображены на рис. 1 кривыми 3.

Теперь можно с уверенностью сказать, что причина противоречия — недостаточно быстрая сходимость ряда (1). Чтобы убедиться в этом, рассмотрим уравнение (9), переписанное в виде

$$\Delta/(2\mu_B) - \alpha M = H. \quad (12)$$

На рис. 4 изображена зависимость левой части уравнения от M (кривые 0) вместе с частичными суммами ряда (1) из одного, двух и трех первых членов (кривые 1, 2, 3 соответственно) при $T=700$ (0—3) и 200 К (0'—3'). Мы видим, что в парамагнитной области при $T=700$ К первых трех членов разложения достаточно для правильного описания кривых $\tilde{H}(M)$ в полях до ~ 3000 кЭ, а первых двух членов — в полях до ~ 600 кЭ. В ферромагнитной же области не только первых двух, но и первых трех членов ряда оказывается совершенно недостаточно.

Покажем теперь, что причиной плохой сходимости ряда оказывается сложная структура плотности состояний вблизи ϵ_F , в частности высокий пик в никеле. Для этого рассмотрим упрощенную модель $g(\epsilon)$, состоящую из одного пика с крутизной правого и левого склона соответственно g'_2 и g'_1 . При $T=0$ легко получить аналитическое выражение для $\tilde{H}(M)$. Пусть потенциал, как в случае никеля, находится на правом склоне. Примем его за начало координат и обозначим через ϵ_0 абсциссу вершины пика. Тогда

$$\tilde{H}(M) = \begin{cases} \frac{1}{2\mu_B} \frac{g_p}{g'_1 g'_2} \left\{ g'_2 \left[1 - \sqrt{1 - \frac{g'_1(M - M_c)}{g_p^2}} \right] - \right. \\ \left. - g'_1 \left[1 - \sqrt{1 + \frac{g'_2(M + M_c)}{g_p^2}} \right] \right\} - \alpha M, & M > M_c, \\ \frac{\sqrt{2}}{2\mu_B g'_2} \sqrt{g_F^2 - \sqrt{g_F^4 - (g'_2 M)^2}} - \alpha M, & M < M_c. \end{cases} \quad (13)$$

Здесь $g_F = g(\zeta_p)$; $g_p = g(\epsilon_0)$; $\delta g' = g'_2 - g'_1$; M_c — значение M , при котором ζ_- достигает вершины пика

$$M_c = -\mu_B \epsilon_0 (2g_F + g'_2 \epsilon_0), \quad (14)$$

через $\tilde{H}(M)$ обозначена функция $\Delta/(2\mu_B) - \alpha M$. Легко убедиться, что $\tilde{H}(M)$ и $d\tilde{H}/dM$ в точке M_c непрерывны, а $d^2\tilde{H}/dM^2$ испытывает скачок. Таким образом, функция $\tilde{H}(M)$ оказывается кусочно-гладкой. Известно, что такая функция будет разложима в ряд по M только слева от M_c . «Наблюдаемая» функция $\tilde{H}(M)$ (или $M(H)$) определена в области, где \tilde{H} положительна. Эта область находится справа от точки M_0 пересечения кривой $\tilde{H}(M)$ с осью абсцисс

$$M_0 = (2\mu_B^2 \alpha g'_2)^{-1} \sqrt{4g_F^2 \mu_B^4 - \alpha^{-2}}, \quad (15)$$

т. е. M_0 есть просто намагнитченность насыщения при $T=0$.

Очевидно, что если $M_0 > M_c$, то разложение $\tilde{H}(M)$ вокруг точки $M=0$ оказывается неприменимым, поскольку между рассматриваемой областью и точкой разложения оказывается особая точка функции. Именно такая ситуация имеет место в никеле, где для нашей плотности состояний получается $M_c = 0.45 \mu_B/\text{ат.}$, а $M_0 \sim 0.61 \mu_B/\text{ат.}$, что соответствует экспериментальному значению намагнитченности.

Таким образом, неразложимость $\tilde{H}(M)$ в ряд вокруг $M=0$ при $T=0$ оказывается связана с попаданием в область обменного расщепления особенности плотности состояний или с неразложимостью в ряд функции $g(\epsilon)$ в этой области.

На основе этих рассуждений можно предложить способ получения из экспериментально измеренной при низких температурах зависимости \tilde{H} от M информации непосредственно о форме плотности состояний $g(\epsilon)$

в области обменного расщепления. А именно при $M_c > M_0$ (это имеет место, например, в любом парамагнетике, где $M_0=0$) прохождение одного из хипотенциалов через пик даст особую точку $H(M)$. Для скачка второй производной $H''(M)$ по M в этой точке легко получить формулу

$$\Delta H'' = -\delta g' / (2\mu_B g_p)^3, \quad (16)$$

где g_p — высота пика.

4. Для конечных температур получить аналитические зависимости, подобные приведенным выше, не представляется возможным. Однако легко понять, как будут меняться M_0 , M_c и характер излома dH/dM с ростом температуры. M_0 убывает, ибо это спонтанная намагниченность. M_c растет за счет движения хипотенциала ζ_p вниз по склону пика. В то же время особенность $H(M)$ размывается за счет теплового размытия поверхности Ферми, которое приводит к эффективному усреднению $g(\zeta)$ и $g'(\zeta)$ по области теплового размытия $\sim T$.

Тем не менее мы имеем функцию $H(M)$, которая вблизи M_c более или

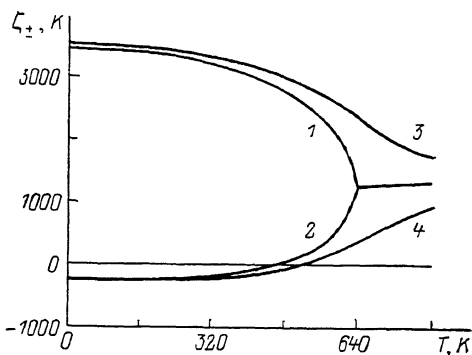


Рис. 5. Температурное движение хипотенциалов.

1, 2 — ζ_+ и ζ_- в отсутствие внешнего поля; 3 — ζ_+ , 4 — ζ_- во внешнем магнитном поле 320 кЭ. Вершина пика $g(\epsilon)$ находится в начале координат.

менее резко меняет характер своей зависимости от аргумента. Очевидно, что при разложении такой функции в ряд возникает альтернатива: либо при подходе к M_c (и далее) ряд вообще перестает сходиться, либо в этой области сходимость резко замедляется и большой (возможно, основной) вклад начинают вносить члены ряда с конечными, но высокими степенями. Нормальная сходимость ряда, когда главными являются лишь несколько его первых членов, естественно, возможна только при достаточной гладкости функции во всей области разложения.

Не ставя цели получить строгие математические критерии, разграничивающие рассмотренные три возможности, мы можем тем не менее высказать следующее «эмпирическое» правило: разложение $H(M)$ быстро сходится, если а) функция $g(\epsilon)$ является гладкой в области расщепления подполос или б) температура больше или порядка величины расщепления $\Delta \leq T$.

В качестве иллюстрации снова рассмотрим ситуацию в никеле. На рис. 4 отчетливо виден рост ширины области быстрой сходимости ряда с ростом температуры. Как при этом меняются положение хипотенциалов относительно пика $g(\epsilon)$ и величина расщепления, видно из рис. 5, где изображено изменение с температурой хипотенциалов ζ_{\pm} .

5. Таким образом, наличие особенности на кривой $g(\epsilon)$ вызывает появление (хотя и менее резкой)³ особенности в зависимости свободной энергии от намагниченности $F(M)$. Если эта особенность попадает между точкой $M=0$ и областью, где исследуется $F(M)$, теория Гинзбурга—Ландау (разложение вокруг $M=0$) становится неприменимой. Действительно, из сказанного выше (в частности, из формулы (14)) ясно видно, что при $T=0$ не только частичная, но и полная сумма бесконечного ряда разложения совпадает с разлагаемой функцией $H(M)$ только на отрезке между 0 и M_c . Однако с ростом температуры особенность сглаживается и при выполнении условия «б» исчезает совсем. Следовательно, вопрос

³ Скачок первой производной $g(\epsilon)$ приводит к скачку лишь третьей производной $F(M)$.

о применимости теории Гинзбурга—Ландау решается в каждом конкретном случае после исследования соотношения между температурой, расстоянием от уровня Ферми до особенности $g(\epsilon)$ и величиной расщепления подполос во внешнем и (или) обменном поле.

Заметим, что вопрос о применимости или неприменимости теории Гинзбурга—Ландау прямо не связан с вопросом о возможности или невозможности аппроксимации экспериментальных зависимостей $H(M)$ полиномом, как это сделано в работе [2]. Если особенность $F(M)$ лежит вне исследуемого диапазона изменения (как это имеет место в никеле), кривые $H(M)$ могут быть гладкими и хорошо описываться некоторым полиномом $aM + bM^3$ с постоянными коэффициентами. Однако эти коэффициенты не есть коэффициенты разложения $H(M)$. Например, очевидно, что если мы возьмем участок $H(M)$ по другую сторону особенности, то получим совсем другие значения a и b . А это равнозначно сильной зависимости a и b от M , чего никак не может быть в случае сходящегося ряда. Иными словами, коэффициенты, определяемые в [2], не являются коэффициентами Гинзбурга—Ландау, а есть просто коэффициенты аппроксимации участка кривой полиномом.

В противоположном случае, когда особенность $H(M)$ лежит в области измеряемых значений M , как указывалось выше, возможно почти непосредственное исследование особенностей $g(\epsilon)$.

Наконец, следует указать, что проведенные для никеля расчеты температурной и полевой зависимостей намагниченности дают при учете слабой зависимости плотности состояний от M хорошее согласие с экспериментом. Это еще раз подтверждает высказанное нами ранее [1] предположение, что при описании магнетизма никеля нет необходимости выхода за рамки теории Стонера.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Irkhin Yu. P., Rosenfeld E. V. // JMMM. 1985. V. 51. P. 165—174.
- [2] Пономарев Б. К., Тиссен В. Г. // ЖЭТФ. 1977. Т. 73. N 1 (7). С. 332—341.
- [3] Shimizu M. // Rep. Prog. Phys. 1981. V. 44. P. 329—409.
- [4] Розенфельд Е. В., Ирхин Ю. П. // ФММ. 1984. Т. 57. N 5. С. 837—851.
- [5] Shimizu M., Katsuki A., Yamada H. // J. Phys. Soc. Jap. 1965. V. 20. N 3. P. 396—401.
- [6] Bradbury D. A. J., Edwards D. M. // Phys. Lett. 1969. V. 30A. N 5. P. 301—302.
- [7] Liu K. L., Macdonald A. H., Daams J. M., Vosko S. H., Koelling D. D. // JMMM. 1979. V. 12. N 1. P. 43—57.
- [8] Moruzzi V. L., Janak J. F., Williams A. R. Calculated electronic properties of metals. Pergamon Press, 1978.
- [9] Crangle J., Goodman G. M. // Proc. Roy. Soc. Lond. A. 1971. V. 321. P. 477—491.

Институт физики металлов УрО АН СССР
Свердловск

Поступило в Редакцию
29 ноября 1988 г.