

01,11

## Электронная структура и магнитный фазовый переход в MnSi

© 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 27 декабря 2016 г.)

В рамках модели электронной структуры, следующей из *ab initio* LDA + *U* + SO-расчетов, описаны температурные изменения амплитуды нулевых и тепловых спиновых флуктуаций в геликоидальном ферромагнетике MnSi. Получено, что возникающее при температуре  $T_S$  (лежащей в окрестности магнитного фазового перехода) резкое уменьшение амплитуды нулевых спиновых флуктуаций ведет к неустойчивости ферромагнитных решений (смена знака параметра межмодового взаимодействия). Это же является причиной наблюдаемых магнитообъемного эффекта и резкого изменения радиуса спиновых корреляций. Результаты расчета объемного коэффициента теплового расширения хорошо согласуются с наблюдаемой аномалией в области магнитного фазового перехода.

DOI: 10.21883/FTT.2017.07.44584.458

1. Кристаллическая структура сильно коррелированных MnSi, Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>Si, Fe<sub>1-y</sub>Mn<sub>y</sub>Si и др. относится к структурному типу B20 с пространственной группой  $P2_13$ , для которой характерно отсутствие центра инверсии [1,2]. Такая симметрия обуславливает возникновение энергетической щели в спектре *d*-электронов [3] и приводит к возникновению антисимметричного релятивистского обмена Дзялошинского–Мории (ДМ) [4,5]. При этом в рассматриваемой сильно коррелированной электронной системе формируется геликоидальное упорядочение с аномально большими магнитными периодами (порядка 100–1000 Å) [6–8], вследствие чего описание электронной структуры сталкивается с заметными трудностями учета длиннопериодической спиновой подсистемы ( $\mathbf{M}_{q_0} \neq 0$ ). Поэтому в *ab initio* LDA + *U* + SO-расчетах электронной структур [3,9–11] пренебрегают ДМ-взаимодействием и получают основное ферромагнитное состояние для MnSi. Модельный учет в рассматриваемом ферромагнитном основном состоянии ДМ-взаимодействия приводит к представлениям о ферромагнитном геликоиде, описываемом моделью Янсена–Бака [6,7].

Вместе с тем в области от  $T_S$  (температуры резкого уменьшения амплитуды нулевых спиновых флуктуаций) до  $T_C$  (температуры перехода в парамагнитное состояние) экспериментально обнаружено возникновение вращения волнового вектора геликоидальной структуры, которое указывает на исчезновение фиксированной оси квантования геликоидальной спирали („катастрофа“ модели Янсена–Бака) [12]. При этом возникает резкое уменьшение радиуса спиновых корреляций (который сохраняет конечное значение при  $T_C$ ), а также формируются лямбдаподобные аномалии теплоемкости и коэффициента объемного теплового расширения (КТР) [2,7]. Однако причины изменения магнитного состояния в области магнитного перехода, особенностей температурной зависимости отрицательного КТР, а также роль

уменьшения объема в формировании электронной структуры не выяснены.

2. В настоящей работе на основе спин-флуктуационной теории моделируется электронная структура и исследуются термодинамические свойства MnSi в окрестности магнитного перехода. Рассматривается сильно коррелированная электронная система с гамильтонианом, учитывающим энергию зонного движения в приближении LDA + *U* + SO [3], внутриатомные кулоновские спиновые и зарядовые корреляции, а также антисимметричное релятивистское взаимодействие Дзялошинского–Мории. Слагаемые кулоновского взаимодействия представлены через спиновые и зарядовые операторы

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

Здесь  $H_0 = \sum_{\mathbf{k},m,\sigma} \epsilon_{\mathbf{k},m,\sigma}^{(LDA)} a_{\mathbf{k},m,\sigma}^+ a_{\mathbf{k},m,\sigma}$  — диагонализированный в приближении LDA + *U* + SO гамильтониан *d*-электронов,  $a_{\mathbf{k},m,\sigma}^+$  ( $a_{\mathbf{k},m,\sigma}$ ) — оператор рождения (уничтожения) электрона,  $\mathbf{k}$  — вектор квазимпульса,  $m$  — индекс *d*-орбитали (см. работу [3] и ссылки в ней),  $\sigma = \pm 1$  — спиновый индекс,  $\epsilon_{\mathbf{k},m,\sigma}^{(LDA)} = \epsilon_{\mathbf{k},m}^{(LDA)} + \sigma \Delta$  — электронный спектр *d*-электронов, рассчитанный в приближении LDA + *U* + SO (спектр  $\epsilon_{\mathbf{k},m}^{(LDA)}$  образует для каждого значения  $m$  две подзоны, разделенные щелью порядка 0.12 eV [3]),  $\Delta$  — спиновое расщепление электронных энергий (не зависящее от  $m$  [3]),

$$H_U = \frac{1}{4} \sum_q \left[ (U - J/2) |\delta n_q|^2 - (U + J) \sum_m |\delta n_{q,m}|^2 \right] - \sum_q [J |\delta S_q^z|^2 + (U - J) \sum_m |\delta S_{q,m}^z|^2] \quad (2)$$

— поправка к приближению LDA + *U* + SO, учитывающая многочастичные хаббардовские корреляции,  $J$  и  $U$  — параметры хаббардовского и хундовского

взаимодействий,  $\delta n_{\mathbf{q}} = \sum_m \delta n_{\mathbf{q},m}$ ,  $\delta S = \sum_m \delta S_{\mathbf{q},m}^{(z)}$ ,  $\delta n_{\mathbf{q},m} = \sum_{\sigma} n_{\mathbf{q},m,\sigma} - \delta n_{q,0} N_m^{(\text{LDA})}$ ,  $n_{\mathbf{q},m,\sigma} = a_{\mathbf{k},m,\sigma}^+ a_{\mathbf{k}+\mathbf{q},m,\sigma}$ ,  $\delta S_{\mathbf{q},m}^{(z)} = S_{\mathbf{q},m}^{(z)} - \delta_{q,0} M_m^{(\text{LDA})}$ ,  $S_{\mathbf{q},m}^{(z)} = \sum_{\sigma} \sigma n_{\mathbf{q},m,\sigma} / 2$ , а  $M_m^{(\text{LDA})}$  и  $N_m^{(\text{LDA})}$  — средние в базисе LDA + U + SO значения Фурье-образов операторов спиновой и зарядовой плотностей. Ввиду малости ДМ-взаимодействия по сравнению с другими обменными взаимодействиями ограничимся его учетом в приближении среднего поля

$$H_{\text{DM}} \approx 2 \sum_m (\mathbf{h}_{\mathbf{q}_0,m}^{(D)} \mathbf{S}_{\mathbf{q}_0,m} - \mathbf{d}_{\mathbf{q}_0} [\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m} \times \mathbf{M}_{-\mathbf{q}_0,m}]), \quad (3)$$

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

Свободную энергию электронной системы, описываемую гамильтонианом (1), будем определять, используя формализм преобразований Стратоновича–Хаббарда, сводящих многочастичные взаимодействия в (2) к взаимодействию электронов с флуктуирующими обменными ( $\xi$ ) и зарядовыми ( $\eta$ ) полями

$$F = -T \ln Z = -T \ln \int_{-\infty}^{\infty} (d\xi, d\eta) Z(\xi, \eta) \exp \left\{ - \sum_{q,m} |\eta_{q,m}|^2 - b \left| \sum_{q,m} \eta_{q,m} \right|^2 - (ic/T) \sum_m \eta_{0,m} N_m^{(\text{LDA})} \right\} \exp \left\{ -a \left| \sum_{q,m} \xi_{q,m} \right|^2 - \sum_{q,m} \left| \xi_{q,m} - \mathbf{h}_{q,m}^{(D)} / c - \delta_{q,0} \Delta / c \right|^2 - 2(c/T) \sum_m M_m^{(\text{LDA})} \xi_{0,m}^{(z)} \right\}, \quad (4)$$

где  $T$  — температура в энергетических единицах,  $a = JU(U - J)^{-1}(U + 5J)^{-1}$ ,  $b = 4U(U - 5J)^{-1}$ ,  $c = U^{1/2}T^{1/2}$ ,  $Z(\xi, \eta) = \text{Sp} T_{\tau} \exp(-H_{\text{eff}}(\xi, \eta)/T)$  — статистическая сумма электронов, движущихся в одной из конфигураций стохастических обменных ( $\xi$ ) и зарядовых ( $\eta$ ) полей,

$$H_{\text{eff}} = \sum_{k,m,\sigma} \varepsilon_{\mathbf{k},m}^{(\text{LDA})} a_{k,m,\sigma}^+ a_{k,m,\sigma} + \sum_{q,m} [(ic/2)\eta_{-q,m} n_{q,m} + c\xi_{-q,m} \mathbf{S}_{q,m}] - \sum_m \mathbf{d}_{\mathbf{q}_0} [\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m} \times \mathbf{M}_{-\mathbf{q}_0,m}] \quad (5)$$

— эффективный гамильтониан,

$$(d\eta d\xi) = \left[ (U - J)U^{-1} \prod_m d\xi_{0,m} d\eta_{0,m} \right] \times \left[ \prod_{q \neq 0, m, j} \prod_m d\xi_{q,m}^{(j)} d\eta_{q,m}^{(j)} \right].$$

Квантово-статистическое усреднение в выражениях статистической суммы в рассматриваемой задаче о фазовых переходах в киральных магнетиках с аномально большими периодами магнитной спиновой структуры можно выполнить на основе приближения однородных локальных полей Герца–Кленина [13]. В рамках этого приближения учитывается пространственно-временная неоднородность вершинных частей второго порядка, к которым сводится фактор обменного усиления магнитной восприимчивости, аномально сильно зависящий от  $\mathbf{q}$  и  $\omega$  в длиннопериодических структурах и вблизи  $T_C$ .

Анализ выражения для статистической суммы показывает, что имеется связь между значениями полей  $\xi$ , определяемыми условиями седловой точки (4), с намагниченностями  $M_{0,m} = U^{-1}(c\xi_{0,m}^{(z)} - UM_m^{(\text{LDA})})$  и  $\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m} = U^{-1}(c\xi_{\mathbf{q}_0,m} - \mathbf{h}_{\mathbf{q}_0,m})$  на векторах  $\mathbf{q} = 0$  и  $\pm \mathbf{q}_0$  соответственно, а также с парными спиновыми корреляторами  $\langle \mathbf{S}_{q,m} \mathbf{S}_{-q,m} \rangle = (c/U)^2 (2|\xi_{q,m}^{(z)}|^2 - 1)$  и среднеквадратичным магнитным моментом на узле —  $M_m = (M_{0,m}^2 + |\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m}|^2 + \langle \mathbf{M}_m^2 \rangle)^{1/2}$ , определяемым значениями намагниченностей и амплитуды спиновых флуктуаций. В соответствии с условиями седловой точки (4)

$$\langle M_m^2 \rangle = (2\pi U)^{-1} \sum_{\mathbf{q}, \gamma} \int_0^{\infty} (1 + 2f_B(\omega/T)) \times \text{Im}(D_m^{-1} + 2\kappa M_{0,m}^2 \delta_{\gamma,z} + 2\kappa_m |M_{\mathbf{q}_0,m}^{(\gamma)}| + X_q)^{-1} d\omega, \quad (6)$$

$f_B(\omega, T)$  — функция Бозе,  $\langle \mathbf{M}_m^2 \rangle = \langle \mathbf{M}_m^2 \rangle_0 + \langle \mathbf{M}_m^2 \rangle_T$ ,  $\langle \mathbf{M}_m^2 \rangle_0$  и  $\langle \mathbf{M}_m^2 \rangle_T$  — амплитуды нулевых и тепловых флуктуаций спиновой плотности электронов, причем суммируя (6) получаем флуктуационно-диссипативную теорему. Здесь  $D_m^{-1} = 1 - \chi_{\perp}^{(m)} + \kappa \langle \mathbf{M}_m^2 \rangle / 3$  — фактор обменного усиления парамагнитной восприимчивости,

$$\chi_{\perp}^{(m)} = (2UM_m)^{-1} \sum_{\alpha=\pm 1} \alpha \int_{-\infty}^{\infty} g_{\alpha,m}(\varepsilon) f(\varepsilon - \mu) d\varepsilon,$$

$$\chi_{\parallel}^{(m)} = 2 \left( \sum_{\alpha=\pm 1} g_{\alpha,m}(\mu) \right)^{-1} \prod_{\alpha=\pm 1} g_{\alpha,m}(\mu),$$

$$\kappa_m = (U^3/M_m^2) [\chi_{\perp}^{(m)} - \chi_{\parallel}^{(m)}]$$

— коэффициент межмодовой связи, определяемый плотностью состояний (см. (7)) спин-симметризованных и спин-антисимметризованных электронных состояний,  $f(\varepsilon - \mu)$  — функция Ферми–Дирака,  $\mu$  — химический потенциал, определяемый из условия электронейтральности:  $N = -\partial F / \partial \mu$ . При этом в соответствии с известной аппроксимацией функции Линдхарда [14]

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

где коэффициенты  $A$  и  $B$  пропорциональны плотности электронных состояний на уровне Ферми,  $T_0 = V_F k_F$ ,

$V_F$  — скорость на поверхности Ферми,  $k_F$  — модуль вектора Ферми,  $\theta(x)$  —  $\theta$ -функция.<sup>1</sup>

В рамках метода производящего функционала (в результате дифференцирования (4) по  $\epsilon_{k,m}^{(LDA)}$ ) можно определить плотность электронных состояний, которая оказывается перенормированной флуктуациями спиновой плотности и представляется в виде суперпозиции спин-симметризованных ( $\alpha = +1$ ) и спин-антисимметризованных ( $\alpha = -1$ ) плотностей электронных состояний сильно коррелированных электронов, причем спиновые флуктуации ведут к перемешиванию состояний с разными значениями полного орбитального магнитного момента.

Учитывая возникающие в рассматриваемом киральном магнетике магнитообъемные эффекты, будем рассматривать плотности электронных состояний, содержащие зависимости от объема. Воспользуемся для плотности электронных состояний моделью соответственных состояний  $g(\epsilon) = (W/W_0)^{-1}g(\epsilon)$ ; считая в соответствии с [15], что 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 отсутствие теплового расширения), имеем

$$g_{m,\alpha}(\epsilon) = 2^{-1}W^{-1} \sum_{m,\sigma=\pm 1} (1 - \sigma\alpha M_{0,m}/M_m) \times g_0^{(m,\sigma)} \left( \epsilon + \alpha \frac{UM_m}{W/W_0} \right). \quad (7)$$

Выражение для свободной энергии при этом будет содержать вклад упругой деформации  $F \rightarrow F_{el} - K\Delta V^2/2$ , где  $K$  — изотермическая сжимаемость, причем электронная часть записывается в виде

$$F_{el} = -T \ln Z = F_{ex} + F_{0el} + F_{sf}, \quad (8)$$

где

$$F_{ex} = \sum_{q(\neq \mathbf{q}_0), m, \gamma} U(1 + (W_0/W)X_q) \langle \mathbf{M}_{q,m,\gamma}^2 \rangle + \sum_m \{ U(1 + (W_0/W)X_{\mathbf{q}_0}) |\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m}|^2 + 2d_{\mathbf{q}_0} [\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m} \mathbf{M}_{-\mathbf{q}_0,m}] \}$$

— энергия хаббардовского обменного взаимодействия спиновых магнитных моментов,

$$F_{0el} = T \sum_{\alpha, m} \int g_{m,\alpha}(\epsilon) \ln \left( 1 + \exp \left( \frac{\mu - \epsilon}{T} \right) \right) d\epsilon - \mu N$$

— одноэлектронный вклад в свободную энергию,

$$F_{sf} = (T/2) \sum_{q(\neq \mathbf{q}_0), \gamma, m} \ln \left( D_m^{-1} + 2\kappa M_{0,m}^2 \delta_{\gamma,z} + 2\kappa_m |M_{\mathbf{q}_0,m}^{(\gamma)}| + (W_0/W)X_q \right)$$

— свободная энергия спиновых флуктуаций.

<sup>1</sup> В рассматриваемой электронной структуре MnSi [3] зависимостью  $X(\mathbf{q}, \omega)$  от индекса  $m$  можно пренебречь.

Уравнения магнитного состояния, получаемые из условий минимума (8) по однородной и неоднородной намагниченности, содержат эффекты, связанные с флуктуациями модуля магнитного момента и чисел заполнения на узле, и имеют вид

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

$$M_{0,m} (D_m^{-1} + \kappa_m |\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m}|^2 + a) = -\Delta (D_m^{-1} + a - \kappa_m \langle \mathbf{M}_m^2 \rangle / 3), \quad (10)$$

где

$$\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m} = \mathbf{M}_{-\mathbf{q}_0,m}^* = 2^{-1/2} (iM_{q_0,m} + \mathbf{j}M_{q_0,m}),$$

$\mathbf{i}$  и  $\mathbf{j}$  — орты, лежащие в геликоидальной плоскости. Уравнения (9), (10) при  $\kappa_m > 0$  соответствуют модели Янсена–Бака [6] для ферромагнитного геликоида, а при  $\kappa_m < 0$  ферромагнитные решения становятся неустойчивыми.

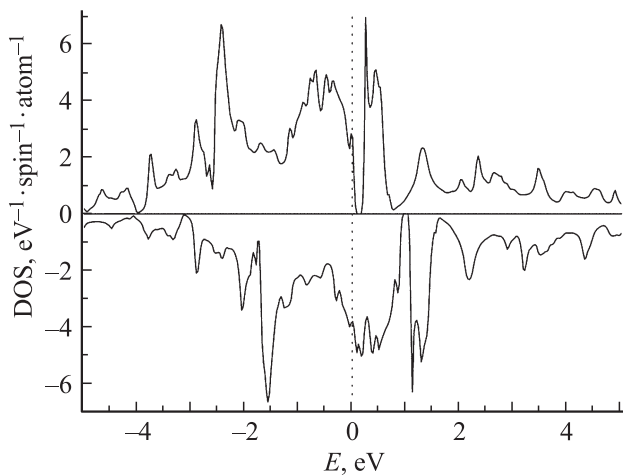
В свою очередь модуль вектора гелимагнитного упорядочения ( $\mathbf{q}_0$ ), который определяется из условия максимума модуля неоднородной намагниченности, удовлетворяет равенству  $q_0 \approx d/2UA$ .

Совместный анализ выражений (6)–(10) позволяет с учетом результатов LDA + U + SO-расчетов получить возможную модель плотности электронных состояний, учитывающую наряду с кулоновскими взаимодействиями, антисимметричный релятивистский обмен Дзялошинского–Мории. Известная из LDA + U + SO-расчетов спиновая система является ферромагнитной, а электронная структура представляет собой расщепленные по направлениям спина спин-поляризованные подзоны с раздвижкой, пропорциональной намагниченности [3,9–11]. Однако учет ДМ-взаимодействия „закручивает“ спины, и однородная намагниченность должна исчезать. Анализ (6)–(10) показывает, что в этом случае ( $M_{0,m} = 0$ ) и при  $\Delta \neq 0$  раздвижка спин-поляризованных подзон исчезает. При этом должен существовать значительный локальный магнитный момент

$$2M_m = (1 + a)^{-1} \sum_{\alpha=\pm 1} \alpha \int_{-\infty}^{\infty} g_{\alpha,m}(\epsilon) f(\epsilon - \mu) d\epsilon,$$

который при малых значениях  $\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,m} (\sim \mathbf{h}_{-\mathbf{q}_0}^{(D)})$  следует трактовать как амплитуду нулевых флуктуаций (6). Наличие таковых позволяет согласовать экспериментальные данные по магнитным моментам с результатами расчетов.

3. В рассчитанной с учетом параметров *ab initio* моделировании электронной структуре MnSi, представленной на рис. 1, величина хаббардовского отталкивания  $U = 0.93$  eV, а параметр хундовского обменного взаимодействия  $J = 0.49$  eV [16]. Плотности состояний  $d$ -электронов, отвечающие разным значениям  $m$ , слабо зависят от  $m$ , т.е.  $g_0^{(m,\sigma)}(\epsilon) \approx g_0^{(\sigma)}(\epsilon)$



**Рис. 1.** Плотность симметризованных и антисимметризованных состояний при  $T = 0$  К. Плотность антисимметризованных состояний была умножена на минус единицу. Положение химического потенциала совпадает с началом отсчета энергии.

при  $|\varepsilon - \mu| \leq UM^{(LDA)} \sim 1$  eV. Поэтому, согласно уравнениям магнитного состояния и условиям перевала для функционала свободной энергии, намагниченность, амплитуда флуктуаций спиновой плотности электронов, среднеквадратичный магнитный момент на узле, а также функции плотностей спин-симметризованных и спин-антисимметризованных электронных состояний (как и определяемые через них другие величины) не зависят от квантового числа  $m$ :  $\mathbf{M}_{q_0,m} \equiv \mathbf{M}_{q_0}$  и  $M_{0,m} \equiv M_0$ ,  $\langle M_m^2 \rangle \equiv \langle M^2 \rangle$ ,  $M_m \equiv M$ ,  $g_{\alpha,m}(\varepsilon) \equiv g_{\alpha}(\varepsilon)$  ( $D_m^{-1} \equiv D^{-1}$ ,  $\chi_{\perp}^{(m)} \equiv \chi_{\perp}$ ,  $\chi_{\parallel}^{(m)} \equiv \chi_{\parallel}$ ,  $\kappa_m \equiv \kappa$  и т.д.).

Тогда в соответствии с (6) амплитуда тепловых спиновых флуктуаций пропорциональна квадрату температуры

$$\langle M^2 \rangle_T = 3B(T/U)^2 (q_0/k_F)^2 [(\lambda/R_C)^2 - 1 + aA^{-1}]^{-1} \times [1 + aA^{-1} + (q_0/k_F)^2 ((\lambda/R_C)^2 - 1)]^{-1}, \quad (11a)$$

а амплитуда нулевых флуктуаций определяется выражением

$$\langle M^2 \rangle_0 = (q_0/k_F)^2 (\pi^2 A^2 B U)^{-1} \sum_{\gamma} [(\lambda/R_C)^2 - 1] \times [1 + \ln(1 + AB^{-1}(R_C/\lambda)^{-2})], \quad (11b)$$

где  $R_C$  — радиус спиновых корреляций, определяемый выражением

$$R_C = k_F^{-1} A^{1/2} (D^{-1} + 2\kappa |M_{q_0}^{(\gamma)}| + a)^{-1/2}, \quad (12)$$

$\lambda = 2\pi q_0^{-1}$  — период геликоидальной спирали.

Согласно термодинамическому условию минимума свободной энергии для относительного изменения объема, получаем

$$\omega = \omega_{0e} + \omega_M, \quad (13)$$

где

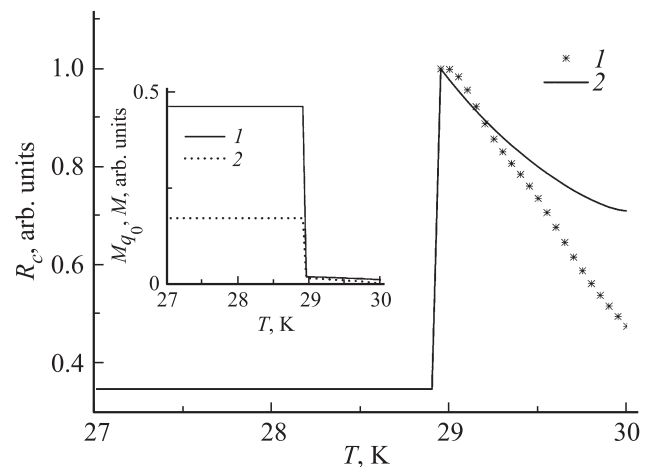
$$\omega_{0e} = \frac{1}{KW} \frac{5}{3} \sum_{a=\pm 1} \int g_a(\varepsilon) (\varepsilon - \mu) f(\varepsilon - \mu) d\varepsilon \quad (13a)$$

— вклад, связанный с одноэлектронными фермиевскими возбуждениями, спектр которых перенормирован спиновыми флуктуациями,

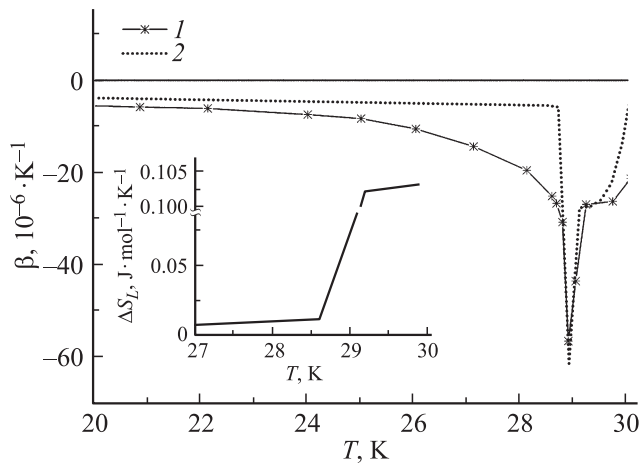
$$\omega_M = \frac{U}{KW} \frac{5}{3} \chi_{\perp} M^2 - \frac{U}{KW} \frac{5}{3} \langle M^2 \rangle D^{-1} \quad (13b)$$

— магнитный вклад. В рассматриваемом случае полного вырождения по магнитному орбитальному квантовому числу  $g_a(\varepsilon)$ ,  $M^2$  и  $\langle M^2 \rangle$  — плотность состояний, квадрат среднеквадратичного магнитного момента и квадрат амплитуды спиновых флуктуаций электронов всех пяти  $d$ -орбиталей.

Как показывает анализ спин-флуктуационных возбуждений и изменения локального момента на узле, наблюдаемые особенности термодинамических свойств в температурной окрестности магнитного фазового перехода связаны с резким уменьшением радиуса спиновых корреляций при температуре  $T_S$  и его последующим уменьшением в интервале от  $T_S$  до  $T_C$  [17,18]. На рис. 2 представлены температурные зависимости радиуса спиновых корреляций, среднеквадратичного значения магнитного момента на узле  $M$ , намагниченности, рассчитанные в развитой модели электронной структуры с учетом уравнения магнитного состояния. Характерной особенностью результатов расчета является резкое уменьшение амплитуды нулевых флуктуаций (в соответствии с формулой (11b)) вблизи температуры  $T_S$ . При этой температуре верхний край нижней подзоны симметризованных по спину  $d$ -состояний достигает положения химического потенциала (см. формулу (7)) вследствие роста



**Рис. 2.** Температурная зависимость радиуса корреляции при приближении к  $T_C$ . 1 — экспериментальные данные [12], 2 — результаты расчета в настоящей работе по формуле (12). На вставке: 1 — температурная зависимость намагниченности, 2 — температурная зависимость магнитного момента.



**Рис. 3.** Температурные зависимости электронного вклада  $\beta$  в тепловое расширение MnSi. 1 — экспериментальные данные [19], 2 — результат расчета  $\beta(T)$  в настоящей работе. На вставке — изменение энтропии локальных магнитных моментов  $\Delta S_L$ .

амплитуды тепловых флуктуаций. В результате данная подзона оказывается полностью заполненной, и дальнейший рост среднеквадратичного магнитного момента с увеличением температуры оказывается невозможным. При этом в соответствии с (7) энергетический спектр антисимметризованных по спину  $d$ -состояний продолжает смещаться вверх по шкале энергий, что ведет к нарушению условия электронейтральности с увеличением температуры. В результате имеет место потеря термодинамической устойчивости всей электронной подсистемы, приводящая к исчезновению нулевых спиновых флуктуаций, перестройке спиновой подсистемы  $d$ -электронов и смене знака коэффициента  $\kappa$  (возникновение неустойчивости ферромагнитных решений). Последнее приводит к возрастанию энтропии  $S = (\partial F / \partial T)$  [16] и радиуса спиновых корреляций (рис. 2), а также сопровождается резким уменьшением объема (см. (13) и температурную зависимость КТР на рис. 3). При этом зависимость самого магнитного момента и энергетического положения химического потенциала от изменения объема, как показывает численный анализ, можно пренебречь.

Дифференцируя выражение (4), с учетом (7) и условий перевала по объему и температуре находим объемный коэффициент теплового расширения

$$\beta = \partial \omega / \partial T = \beta_{0e} + \beta_M. \quad (14)$$

Здесь

$$\beta_{0e} = -\frac{5}{3K} T^{-1} \sum_{\beta=\pm 1} \int g_0(\epsilon) (\epsilon - \mu - \beta Um)^2 \times f'(\epsilon - \mu - \beta Um) d\epsilon \quad (14a)$$

— вклад фермиевских возбуждений, а  $\beta_M$  — магнитный вклад, определяемый в магнитоупорядоченной области

температур выражением

$$\beta_M = 2 \frac{U}{K} \frac{5}{3} \kappa \left( \frac{dM_{q_0}^2}{5dT} \langle M^2 \rangle + X_{q_0} \frac{d\langle M^2 \rangle}{dT} \right), \quad (14b)$$

а в парамагнитной области температур

$$\beta_M = \frac{U}{2K} \frac{5}{3} \left( M \frac{dD^{-1}}{dM} + D^{-1} \right) \frac{dM^2}{dT}, \quad (14c)$$

Расчет показывает, что на кривой КТР вблизи температуры  $T_S$  возникает лямбда-подобная аномалия, выше которой на температурной зависимости формируется „плечо“ (рис. 3). Аналогичная особенность формируется и на температурной зависимости намагниченности, которая выше температуры  $T_S$  вследствие изменения знака параметра межмодовой связи  $\kappa$  приближенно описывается выражениями

$$M_{q_0} = \langle M^2 \rangle_{T_C}^{1/2} (1 - (T/T_C)^2)^{1/2},$$

$$T_C = \kappa^{-1} B^{-1} U \left( |D(\langle M^2 \rangle_{T_C}^{1/2})^{-1}| - a - dq_0/U \right)^{1/2},$$

при этом значения радиуса корреляций спинов как в развитой модели, так и в эксперименте в противоречии с теорией переходов второго рода сохраняют конечные значения (рис. 2).

4. Таким образом исследование взаимосвязи электронной структуры и спинового состояния показывает, что магнитное состояние MnSi характеризуется двумя особенностями, возникающими вблизи температуры магнитного перехода, связанными с подавлением магнитных моментов геликоидального ферромагнитного состояния при  $T_S$  и исчезновением геликоидального упорядочения при  $T_C$ . Следствием эффекта подавления нулевых флуктуаций являются резкое уменьшение радиуса спиновых корреляций, возрастание энтропии спиновой системы и отрицательный объемный эффект. В температурном интервале от  $T_S$  до  $T_C$  изменения электронной структуры, согласно (7), приводят к изменению знака параметра межмодовой связи в уравнениях магнитного состояния (9), (10), что делает ферромагнитное состояние неустойчивым и должно привести к флуктуациям направления оси квантования.

В том случае, когда уровень химического потенциала расположен в области энергий невырожденных орбитальных состояний, приходится учитывать эффект флуктуаций орбитальных магнитных моментов, который формально учтен в уравнениях (9), (10). Такая ситуация может возникнуть в сплавах  $Fe_{1-x}Co_xSi$ ,  $Fe_{1-y}Mn_ySi$ , электронная структура которых требует отдельного изучения.

## Список литературы

- [1] S.V. Grigoriev, D. Chernyshov, V.A. Dyadkin, V. Dmitriev, E.V. Moskvina, D. Lamago, Th. Wolf, D. Menzel, J. Schoenes, S.V. Maleyev, H. Eckerlebe. Phys. Rev. B **81**, 012408 (2010).

- [2] С.М. Стишов, А.Е. Перова. УФН **181**, 1157 (2011).
- [3] K.V. Shanavas, S. Satpathy. Phys. Rev. B **93**, 195101 (2016).
- [4] И.Е. Дзялошинский. ЖЭТФ **32**, 1547 (1957).
- [5] T. Moriya. Phys. Rev. **120**, 91 (1960).
- [6] P. Bak, M.H. Jensen. J. Phys. C **13**, L881 (1980).
- [7] О.Г. Страшников, А.А. Повзнер, П.В. Гельд. ФНТ **9**, 1286 (1983).
- [8] S.V. Grigoriev, S.V. Maleyev, A.I. Okorokov, Yu.O. Chetverikov, P. Böni, R. Georgii, D. Lamago, H. Eckerlebe, K. Pranzas. Phys. Rev. B **74**, 214414 (2006).
- [9] J.H. Wernick, G.K. Wertheim, R.C. Sherwood. Mater. Res. Bull. **7**, 1431 (1972).
- [10] M. Corti, F. Carbone, M. Filibian, T. Jarlborg, A.A. Nugroho, P. Carretta. Phys. Rev. B **75**, 115111 (2007).
- [11] T. Jeong, W.E. Pickett. Phys. Rev. B **70**, 075114 (2004).
- [12] M. Janoschek, M. Garst, A. Bauer, P. Krautscheid, R. Georgii, P. Böni, C. Pfleiderer. Phys. Rev. B **87**, 134407 (2013).
- [13] J.A. Hertz, M.A. Klenin. Phys. Rev. B **10**, 1084 (1974).
- [14] И.Е. Дзялошинский, П.С. Кондратенко. ЖЭТФ **70**, 1987 (1976).
- [15] V. Heine. Phys. Rev. **153**, 673 (1967).
- [16] А.А. Повзнер, А.Г. Волков, Т.А. Ноговицына. ФТТ **59**, 211 (2017).
- [17] А.А. Повзнер, А.Г. Волков, И.А. Ясюлевич. ФТТ **58**, 1283 (2016).
- [18] S.V. Grigoriev, S.V. Maleyev, E.V. Moskvina, V.A. Dyadkin, P. Fouquet, H. Eckerlebe. Phys. Rev. B **81**, 144413 (2010).
- [19] S.M. Stishov, A.E. Petrova, S. Khasanov, G.Kh. Panova, A.A. Shikov, J.C. Lashley, D. Wu, T.A. Lograsso. ЖЭТФ **133**, 1017 (2008).