

01,11

Спиновые флуктуации и концентрационные магнитные переходы в киральных геликоидальных ферромагнетиках $Fe_{1-x}Co_xSi$

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

Уральский федеральный университет,
Екатеринбург, Россия

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

Поступила в Редакцию 19 августа 2019 г.

В окончательной редакции 19 августа 2019 г.

Принята к публикации 3 сентября 2019 г.

Флуктуационная теория применяется к исследованию концентрационных превращений в киральных геликоидальных ферромагнитных квазибинарных неупорядоченных сплавах $Fe_{1-x}Co_xSi$ со взаимодействием Дзялошинского–Мория. Основное состояние описывается на основе используемых в *ab initio* расчетах приближений LDA + U + SO, с дополнительным учетом концентрационных флуктуаций, связанных с различием потенциалов внутриатомного хаббардовского взаимодействия на узлах, занятых атомами железа и кобальта. Рассматриваются решения полученных уравнений магнитного состояния для фаз дальнего и ближнего порядков с правой и левой магнитной киральностью. Исследуются концентрационные зависимости параметров межмодового взаимодействия и области составов, в которых имеют место индуцированные тепловыми флуктуациями магнитные фазовые переходы первого рода, сопровождаемые возникновением флуктуаций спиновой спирали. Показано, что переход с изменением знака магнитной киральности сопровождается возникновением минимума на концентрационной зависимости параметра мода–мода и возникновением квантового геликоидального ферромагнетизма с заметным усилением нулевых спиновых флуктуаций.

Ключевые слова: геликоидальный ферромагнетизм, спиновые флуктуации, электронная структура.

DOI: 10.21883/FIT.2020.01.48737.569

1. Введение

Сильно коррелированные геликоидальные ферромагнетики $Fe_{1-x}Co_xSi$ являются прототипами современных спинтронных материалов, однако природа формирования в них не тривиальных и неоднородных спиновых магнитных фаз недостаточно изучена. Рассматриваемая группа сплавов относится к структурному типу B20 с пространственной группой $P2_13$, для которой характерно отсутствие центра инверсии [1], вследствие чего возникает антисимметричное релятивистское обменное взаимодействие Дзялошинского–Мория (ДМ) с фиксированной магнитной киральностью. Конкуренция ДМ-взаимодействия с неоднородным обменным взаимодействием приводит к формированию длиннопериодических геликоидальных спиновых спиралей с аномально большими (по сравнению с другими киральными геликоидальными ферромагнетиками со структурой B20) магнитными периодами, порядка 100–1000 Å [2]. Причины таких повышенных значений магнитных периодов, так же как их аномально резкое концентрационное возрастание вблизи концентрации $x_C = 0.65$, при которой наблюдается переход в не геликоидальное состояние с параметром ДМ-взаимодействия, равным нулю [3], требуют дальнейших исследований.

Известно [4], что причиной фазовых переходов первого рода, сопровождаемых возникновением неустойчивых

ферромагнитных состояний с флуктуациями спирали и формированием скирмионных фаз является смена знаков параметров межмодовой связи в функционале Гинзбурга–Ландау. Поэтому термодинамический анализ устойчивости возможных спиновых фаз необходимо дополнить исследованиями особенностей DOS в окрестности уровня Ферми, что возможно в рамках первопринципных исследований электронной структуры.

До настоящего времени результаты таких расчетов в применении к магнитным сплавам системы $Fe_{1-x}Co_xSi$ остаются явно недостаточными для исследования концентрационных зависимостей магнитных свойств. *Ab initio* LSDA + U + SO-расчеты магнитных моментов основного ферромагнитного состояния $Fe_{1-x}Co_xSi$ приводят к расчетным значениям, которые заметно превышают экспериментальные данные (см. [5,6] и ниже рис. 3). В работе [6] исследование концентрационных зависимостей магнитных моментов было выполнено в GGA + U схеме виртуального кристалла, учитывающей неоднородное пространственное распределение спиновой плотности (градиентное приближение). Хотя при таком подходе согласие с экспериментальными данными значительно улучшилось, однако не удалось получить удовлетворительное согласие с наблюдаемыми концентрационными границами магнитоупорядоченной области, что, по-видимому, указывает на преувеличение роли пространственных неоднородностей, описываемых градиентными поправками.

Поправки к приближению виртуального кристалла также рассматривались в рамках спин-флуктуационной модели с учетом LSDA+U+SO-электронных спектров для составов с $x = 0.3$ и 0.5 [7]. Однако не были получены уравнения для локальной намагниченности, решения, описывающие смену знака магнитной киральности ($x = x_C$), а также не исследовались возможные эффекты нулевых спиновых флуктуаций (возможность квантовой критичности?). Не рассматривались причины того, почему неустойчивости ферромагнитной профазы, приводящие к подавлению геликоидального дальнего порядка и возникновению ближнего порядка с флуктуациями спирали и скирмионными решетками, возникают только в интервале концентраций x от 0.2 до 0.5 [2].

В настоящей работе, на основе DOS, полученных путем *ab initio* LDA+U-зонных расчетов, проведенных для широкой области концентраций, исследуются полученные уравнения магнитного состояния, определяющие концентрационно-температурную зависимость локальной намагниченности, неоднородные спиновые фазы, спиновые флуктуации, возникающие при температурно-концентрационных переходах. Поправки, связанные с концентрационными флуктуациями, рассматриваются самосогласованно, а не через локальную намагниченность, определяемую в схеме LSDA+U+SO, как это было сделано в [7]. Рассматриваются причины возникновения концентрационных областей, в которых при фазовых переходах первого рода формируются фазы с флуктуациями спиновой спирали, концентрационного перехода при $x = x_C$ с изменением знака спиновой киральности. Получено, что при $x > x_C$ формируется область квантового геликоидального ферромагнетизма.

2. Модель ферромагнитной профазы

Рассмотрим сильно коррелированную электронную систему киральных магнетиков $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ с гамильтонианом, учитывающим энергию зонного движения, внутриатомные кулоновские спиновые и зарядовые корреляции, с учетом различия внутриатомных и кулоновских взаимодействий на узлах, занятых атомами Fe на Co. Исходя из *ab initio* расчетов электронной структуры сплавов $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, отметим, что уровень Ферми находится в верхней энергетической зоне, сформированной преимущественно t_0 -состояниями, в которой орбитальным вырождением и хундовским взаимодействием можно пренебречь. Гамильтониан модели Хаббарда–Канамори [8] в таком случае будет выглядеть следующим образом:

$$\mathcal{H} = H_0 + \delta\mathcal{H}_{\text{int}}, \quad (1)$$

где $H_0 = \sum_{\mathbf{k},\sigma} \varepsilon_{\mathbf{k},\sigma} a_{\mathbf{k},\sigma}^+ a_{\mathbf{k},\sigma}$ — гамильтониан зонного движения сильно коррелированных 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, $\sigma (= \pm 1)$ — спиновый индекс, $\varepsilon_{\mathbf{k}}^{(\text{LDA})}$ —

электронный спектр d -электронов в t_0 -орбитальном состоянии, рассчитанный в LDA+U+SO — приближении и приближении виртуального кристалла и отсчитываемый от энергии химического потенциала рассматриваемой электронной системы.

$$\begin{aligned} \delta\mathcal{H}_{\text{int}} = & (U_{\text{Fe}} - U_{\text{Co}}) \sum_{\mathbf{v}} \delta p_{\mathbf{v}} \sum_{\sigma} \langle n_{\sigma} \rangle_0 \delta n_{\mathbf{v}} / 2 \\ & - \sum_{\mathbf{v}} (U_{\text{Fe}}(1 - p_{\mathbf{v}}) + U_{\text{Co}} p_{\mathbf{v}}) \left[(S_{\mathbf{v}}^{(z)})^2 - (\delta n_{\mathbf{v}})^2 / 4 \right] \end{aligned} \quad (2)$$

— поправка, включающая в себя флуктуации электронной плотности, которые обусловлены межэлектронными корреляциями и различием параметров Хаббардовского взаимодействия на узлах, оккупированных атомами кобальта или железа (U_{Co} и U_{Fe} — соответственно), $\delta p_{\mathbf{v}} = p_{\mathbf{v}} - p$, p — концентрация атомов кобальта, $p_{\mathbf{v}}$ — проекционный оператор, который может принимать значения 0 на узле, занятом железом, и 1, если узел занят кобальтом, ($p_{\mathbf{v}}^2 = p_{\mathbf{v}}$), $n_{\mathbf{v},\sigma} = a_{\mathbf{v},\sigma}^+ a_{\mathbf{v},\sigma}$, $S_{\mathbf{v}}^{(z)} = \sum_{\sigma} \sigma n_{\mathbf{v},\sigma} / 2$, $\delta n_{\mathbf{v}} = n_{\mathbf{v}} - \sum_{\sigma} \langle n_{\sigma} \rangle_0$, $n_{\mathbf{v}} = \sum_{\sigma} n_{\mathbf{v},\sigma}$, $\langle n_{\mathbf{v},\sigma} \rangle_0 = \langle n_{\sigma} \rangle_0$ — числа заполнения спиновых d -состояний на узле в приближениях LDA+U и виртуального кристалла.

Для записи статистической суммы перейдем в мацубаровское представление взаимодействия и введем единичные по модулю векторы $\mathbf{e}_{\mathbf{v}}$, которые в момент мацубаровского „времени“ τ направлены вдоль оси квантования оператора спина на узле \mathbf{v} — $\mathbf{S}_{\mathbf{v}} = S_{\mathbf{v}}^{(z)} \mathbf{e}_{\mathbf{v}}$. Выполняя усреднение выражения для статистической суммы по всем возможным направлениям этих векторов, имеем

$$\begin{aligned} Z_p = & \int_0^{4\pi} (d\Omega) \text{Sp} T_{\tau} \\ & \times \exp \left\{ -H_0/T + \sum_{\mathbf{v}} (U_{\text{Fe}} - U_{\text{Co}}) \delta p_{\mathbf{v}} \sum_{\sigma} \langle n_{\sigma} \rangle_0 \delta n_{\mathbf{v}} / 2 \right. \\ & \left. - \sum_{\mathbf{v}} (U_{\text{Fe}}(1 - p_{\mathbf{v}}) + U_{\text{Co}} p_{\mathbf{v}}) \left[(\mathbf{e}_{\mathbf{v}} \mathbf{S}_{\mathbf{v}})^2 - (\delta n_{\mathbf{v}})^2 / 4 \right] \right\}, \end{aligned} \quad (3)$$

где $(d\Omega) = \Pi_{\mathbf{v}} d\Omega_{\mathbf{v}}$, $d\Omega_{\mathbf{v}}$ — элемент телесного угла направлений единичного вектора $\mathbf{e}_{\mathbf{v}}$, $\mathbf{v} = (\mathbf{v}, \tau)$.

Далее, для того чтобы свести многочастичные взаимодействия в (2) (которые соответствуют квадратичным слагаемым по оператору спиновой плотности) к взаимодействию электронов с флуктуирующими обменными полями (ξ), используем процедуру формализма преобразований Стратоновича–Хаббарда [9]

$$\begin{aligned} Z_p = & \int (d\xi d\eta) (d\Omega) \\ & \times \exp \left\{ - \sum_q |\xi_q|^2 - \sum_q |\eta_q|^2 \right\} Z(\xi_q, \rho_q, \langle n_{\sigma} \rangle_0), \end{aligned} \quad (4)$$

где

$$Z(\xi) = \text{sp} T_r \exp \left(-T^{-1} H_0^{(\text{LDA})} - T^{-1} \tilde{\mathcal{H}} \right),$$

$$(d\xi d\eta) = d\xi_0 d\eta_0 \prod_{q \neq 0, j=1,2} d\xi_q^{(j)} d\eta_q^{(j)}$$

(индекс j нумерует реальную и мнимую части стохастических ξ - и η -полей),

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

$$\xi_{-q} = c \left(\xi_{-q} \mathbf{e}_{-q} + (2U)^{-1} (U_{C_0} - U_{Fe}) \sum_v \delta p_v e^{iqv} \right),$$

$$\rho_{-q} = c \left(\eta_{-q} - (2U)^{-1} (U_{C_0} - U_{Fe}) \sum_v \delta p_v \sum_\sigma \langle n_\sigma \rangle_0 e^{iqv} / 4 \right),$$

\mathbf{S}_q — фурье-образы оператора вектора \mathbf{S}_v , $c = (UT)^{1/2}$, $U = (1-p)U_{Fe} + pU_{C_0}$, $q = (\mathbf{q}, \omega_{2n})$, ω_{2n} — мацубаровская бозе-частота.

3. Уравнение магнитного состояния с учетом ДМ-взаимодействия

Для того чтобы описать ферромагнитное геликоидальное упорядочение, выражение, полученное для свободной энергии ферромагнитного состояния, необходимо дополнить малой поправкой, которая описывает энергию взаимодействия Дзялошинского–Мория. Поле Дзялошинского будем вводить феноменологически, и в силу его малости ограничимся его учетом в приближении среднего поля. Выполним следующую замену

$$H_{\text{eff}} \rightarrow H_{\text{eff}} - \sum_m \left[\mathbf{h}_{\mathbf{q}_0, m}^{(D)} \times \mathbf{S}_{-\mathbf{q}_0, m} \right],$$

а затем

$$\xi_{\mathbf{q}_0, m} \rightarrow \xi_{\mathbf{q}_0, m} - \mathbf{h}_{\mathbf{q}_0, m}^{(D)} / c,$$

где $\mathbf{h}_{\mathbf{q}_0}^{(D)} = [\mathbf{M}_{\mathbf{q}_-, m} \times \mathbf{d}_{\mathbf{q}_0}]$ — среднее поле Дзялошинского, $\mathbf{d}_{\mathbf{q}_0} = id\mathbf{q}_0$, d — постоянная Дзялошинского–Мория, $\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0, m} (= \langle \mathbf{S}_{\mathbf{q}_0, m} \rangle)$ — вектор неоднородной намагниченности на векторе \mathbf{q}_0 .

В рассматриваемой задаче о фазовых переходах в киральных магнетиках с аномально большими периодами магнитной структуры квантостатистическое вычисление выражения для функционала свободной энергии $Z(\xi, \langle n_\sigma \rangle_0)$ выполним на основе приближения однородных локальных полей [10]. Разлагая (4) по степеням $\tilde{\mathcal{H}}$ и проводя квантостатистическое усреднение, получаем ряд по степеням внутренних обменных и зарядовых полей, действующих на электроны, $-\xi_q$ и ρ_q .

Вычисления функциональных интегралов выполним в приближении метода наискорейшего спуска по переменным: ξ_0 , $\xi_{\pm\mathbf{q}_0}^{(y)}$, η_q , $|\xi_q^{(y)}|$ и $\phi_q^{(y)} (= \arg \xi_q^{(y)})$, перевальные значения которых определяются условиями максимума подынтегрального выражения в (4). Условия перевала

для зарядовых полей, согласно уравнению электронной нейтральности

$$x = \sum_\alpha \int f(\varepsilon - \mu) g_\alpha(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (6)$$

сводятся к виду

$$\rho_v = \left(|\xi| \sum_\alpha g_\alpha(\varepsilon) \right)^{-1} \sum_\alpha \alpha g_\alpha(\varepsilon) \left(|\xi_v|^2 - |\xi|^2 \right),$$

где $|\xi|^2 = N_0^{-1} \sum_v \xi_v^2$. При этом плотность электронных состояний вследствие расщепления электронных термов флуктуирующими обменными полями разбивается на подзоны с плотностями состояний

$$g_\alpha(\varepsilon) = g_0^{(\text{LDA})}(\varepsilon + \alpha U_m),$$

где значениям $\alpha = +1$ соответствуют низко энергетические состояния, а $\alpha = -1$ — высоко энергетические состояния.

Анализ выражения для статистической суммы (4) показывает, что имеется связь между перевальными значениями ξ -полей с намагниченностями $M_0 = U^{-1}(c\xi_0^{(z)-h})$ и $\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0, m} = U^{-1}(c\xi_{\mathbf{q}_0} - \mathbf{h}_{\mathbf{q}_0})$ на векторах $\mathbf{q} = 0$ и $\pm\mathbf{q}_0$, и среднеквадратическим магнитным моментом на узле, определяемом значениями модуля намагниченности и амплитуды спиновых флуктуаций

$$m^2 = (c/U)^2 \sum_v \xi_v^2 + U(U_{C_0} - U_{Fe})(c/U)^2 \sum_v (\delta p_v \xi_v)^2. \quad (7)$$

Если принять условия гомеопolarityности и хаотического сплава $\langle \delta p_\nu \delta p_\mu \rangle = x(1-x)\delta_{\nu, \mu}$, получим два вклада в среднеквадратический спиновый момент, связанные с фрустрациями и квантовыми спиновыми флуктуациями, которые перенормированы концентрационными флуктуациями хаббардовского потенциала

$$m^2 = \left(1 + x(1-x)U^{-1}(U_{C_0} - U_{Fe}) \right) \left(\sum_{\mathbf{q}=\pm\mathbf{q}_0} |\mathbf{M}_{\mathbf{q}}|^2 + \langle m^2 \rangle \right). \quad (8)$$

Кроме того, согласно условиям седловой точки, имеем

$$2r_{q\gamma}^2 \left(\langle D^{-1} \rangle_p + a + \langle \kappa \rangle_p \sum_{\pm\mathbf{q}_0} |\mathbf{M}_{\mathbf{q}, \gamma}|^2 + \langle \kappa \rangle_p x(1-x)U^{-1}(U_{C_0} - U_{Fe}) \sum_{\mathbf{q}=\pm\mathbf{q}_0} |\mathbf{M}_{\mathbf{q}, \gamma}|^2 + X_q \right) = 1$$

откуда

$$\begin{aligned} \langle m^2 \rangle &= (T/U) \sum_q (2r_q^2 + 1) \\ &= (2\pi)^{-1} \sum_{\mathbf{q}(\neq\mathbf{q}_0)} \int_0^\infty (1 + 2f_B(\omega/T)) \text{Im} \langle T_r \mathbf{S}_{\mathbf{q}, m} \mathbf{S}_{-\mathbf{q}, m} \rangle d\omega. \end{aligned} \quad (9)$$

Здесь $f_B(\omega/T)$ — функция Бозе–Эйнштейна,

$$\langle D^{-1} \rangle_p = 1 - U\chi_{\perp}(m) + (1+x(1-x)U^{-1}(U_{Co} - U_{Fe}))\langle \kappa \rangle_p (\langle m^2 \rangle) / 3 \quad (10)$$

— фактор обменного усиления однородной магнитной восприимчивости.

Коэффициент межмодовой связи

$$\langle \kappa \rangle_p = (U/m^2) [\chi_{\perp}(m) - \chi_{\parallel}(m)] \quad (11)$$

можно выразить через поперечную и продольную восприимчивости $\chi_{\perp} = (2Um_p)^{-1}\Delta n$ и $\chi_{\parallel} = 2(\sum_{\alpha=\pm 1} g_{\alpha}(\mu))^{-1} \Pi_{\alpha=\pm 1} g_{\alpha}(\mu)$, причем

$$\Delta = \sum_{\alpha=\pm 1} \alpha \int_{-\infty}^{\infty} g_{\alpha}(\varepsilon) f(\varepsilon - \mu) d\varepsilon$$

есть разность чисел заполнения низко- и высокоэнергетических состояний с $\alpha = \pm 1$ („правильные“ и „не правильные“ спины).

Наконец, из условий минимума статистической суммы (4) по однородной и неоднородной намагниченности получаем уравнения магнитного состояния для локальной и неоднородной намагниченностей

$$\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0} \left(\langle D^{-1} \rangle_p + \langle \kappa \rangle_p x(1-x)U^{-1}(U_{Co} - U_{Fe}) \times \sum_{\mathbf{q}=\pm\mathbf{q}_0} |\mathbf{M}_{\mathbf{q},\gamma}| + X(\mathbf{q}_0, 0) \right) + \langle \kappa \rangle_p \mathbf{M}_{\mathbf{q}_0,0} (\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0})^2 \approx \mathbf{h}_{\mathbf{q}}, \quad (12)$$

где $\mathbf{h}_{\mathbf{q}} = \mathbf{h}$, $\mathbf{h}_{\mathbf{q},\gamma}^{(D)}$, $\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0} (= \mathbf{M}_{-\mathbf{q}_0}^*) = 2^{-1/2} (\mathbf{i}M_{\mathbf{q}_0}^{(x)} + \mathbf{j}M_{\mathbf{q}_0}^{(y)})$, \mathbf{i} и \mathbf{j} — орты, лежащие в геликоидальной плоскости, \mathbf{h} — вектор внешнего однородного магнитного поля в единицах магнетона Бора.

4. Решения уравнения магнитного состояния

В рассматриваемом случае неупорядоченных сплавов имеем два типа решений уравнения магнитного состояния. Когда параметр межмодового взаимодействия положителен ($\kappa > 0$) и фактор обменного усиления $D < 0$, решения уравнения магнитного состояния (12) соответствуют ферромагнитному геликоиду, в котором вектор амплитуды геликоидальной структуры фиксирован. В такой магнетике возможна как левая, так и правая магнитная киральность

$$M_{\mathbf{q}_0}^{(x)} = M_S/2, \quad M_{\mathbf{q}_0}^{(y)} = \pm iM_S/2, \quad (13)$$

$$M_S = (2\langle \kappa \rangle_p)^{-1/2} \left(\left(\langle D^{-1} \rangle_p + \langle \kappa \rangle_p x(1-x)U^{-1}(U_{Co} - U_{Fe}) \times \sum_{\mathbf{q}=\pm\mathbf{q}_0} |\mathbf{M}_{\mathbf{q}}|^2 + X(\mathbf{q}, 0) \right)^2 - (dq_0/U^2) \right)^{1/4}. \quad (14)$$

Последнее уравнение имеет два решения, соответствующие двум разным знакам магнитной киральности (разность квадратов в (14)).

Если знак межмодового взаимодействия отрицательный ($\kappa < 0$), то в зависимости от знака D возникают флуктуации левой либо правой спирали

$$M_{\mathbf{v}}^{(x)} = M_S \cos(\mathbf{q}_0\mathbf{v} + \varphi)$$

и

$$M_{\mathbf{v}}^{(y)} = \mp M_S \sin(\mathbf{q}_0\mathbf{v} + \varphi), \quad (15)$$

где фаза φ , из-за исчезновения ферромагнитной оси квантования, меняется стохастически.

При магнитном переходе киральность возникающих флуктуаций спирали должна быть такой же, как и киральность исходного геликоидального упорядочения.

Модуль волнового вектора геликоидального упорядочения \mathbf{q}_0 определяется условием максимума модуля вектора амплитуды неоднородной намагниченности. В модели Линдхарда для паулиевской восприимчивости

$$\chi^{(0)}(\mathbf{q}, \Omega) = \chi^{(0)}(0, 0) \left(1 + A(\mathbf{q}/k_F)^2 - iB|U_{\mathbf{q}}/k_F|^{-1} \omega \theta(T_0|\mathbf{q}/k_F| - \omega) \right) \theta(2k_F - |\mathbf{q}|) \quad (16)$$

имеем: $|\mathbf{q}_0| \approx d/2UA$.

Аналогично [11] можно показать, что решения для флуктуаций спирали справедливы в области ферромагнитных спиновых корреляций, радиус которых описывается выражением

$$R_C = k_F^{-1} A^{1/2} \left(|\langle \kappa \rangle_p| (2|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0}|^2 + \langle m^2 \rangle) \right)^{-1/2}.$$

Причиной изменения знаков D и κ могут быть концен-трационные и (или) температурные скачки амплитуды квантовых (например нулевых) спиновых флуктуаций. Пример таких эффектов дает магнитный фазовый переход в MnSi [11], который сопровождается скачкообразным подавлением нулевых спиновых флуктуаций и возникновением кроссовера фазового перехода первого рода и квантового перехода.

Температура исчезновения решений, описывающих геликоидальный дальний порядок, соответствует температуре максимума однородной магнитной восприимчивости, которая, согласно уравнениям (12), имеет вид

$$\chi = 2U^{-1} \left[(|\langle \kappa \rangle_p| (2|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_0}|^2 + \langle m^2 \rangle) - X(\mathbf{q}_0, 0))^{-1} - 1 \right]. \quad (17)$$

5. Анализ эксперимента в модели DOS Fe_{1-x}Co_xSi

Для численного анализа полученных выражений рассчитана плотность электронных состояний с использованием метода LDA + U + SO. При расчетах использовался программный пакет Elk. Структурные данные для исследуемых сплавов были заимствованы из [12]. В частности, учитывалось, что постоянная решетки

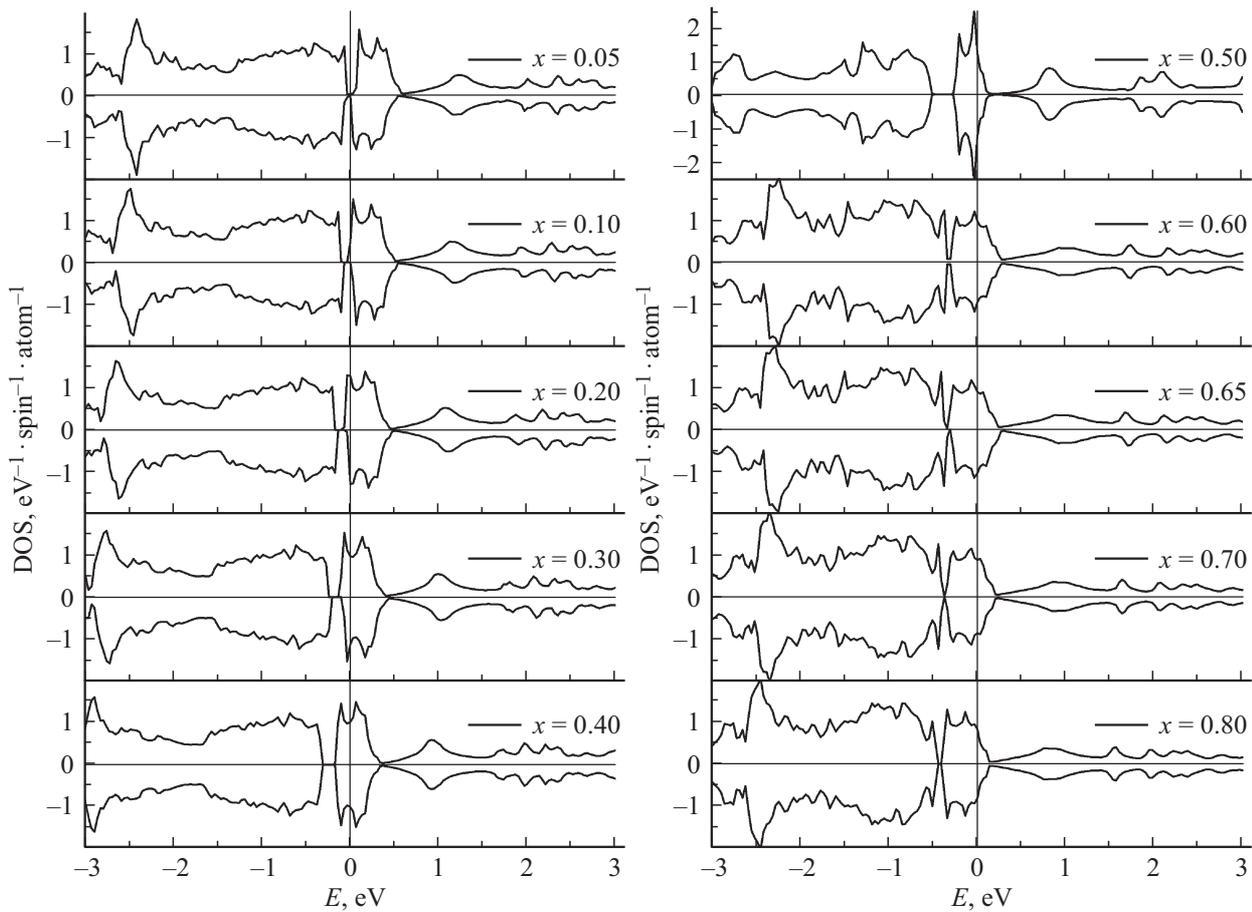


Рис. 1. Плотности электронных состояний сплавов $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, рассчитанные в методе $\text{LDA} + \text{U} + \text{SO}$. Положение химического потенциала совпадает с началом отсчета энергии. Параметры хаббардовского взаимодействия вычислялись в приближении виртуального кристалла: $U = (1 - x)U_{\text{Fe}} + xU_{\text{Co}}$, $U_{\text{Co}} = 2.4 \text{ eV}$, $U_{\text{Fe}} = 1.2 \text{ eV}$, x — концентрация кобальта.

изменяется линейно с ростом концентрации кобальта. При этом имеет место изменение атомной киральности исследуемых сплавов.

На рис. 1 приведены рассчитанные плотности электронных состояний для сплавов $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ с $x = 0.05 - 0.8$ в модели виртуального кристалла. Видим, что плотности состояний рассматриваемых составов состоит из двух подзон, разделенных энергетической щелью. Зона, в которой находится уровень Ферми в обоих случаях, формируется преимущественно синглетными t_0 -электронными состояниями. Расчеты хундовского взаимодействия для этой энергетической полосы дают пренебрежимо малые значения по сравнению с рассчитанными величинами U .

Далее рассчитывались амплитуды нулевых и тепловых спиновых флуктуаций в случае неупорядоченного сплава. Используя модель Линдхарда (14) и уравнение магнитного состояния (12) было получено

$$\langle m^2 \rangle_0 = (4\pi^2 A^2 B)^{-1} \sum_{\gamma} \left[\left(\langle D^{-1} \rangle_p + 2 \langle \kappa \rangle_p M_S^2 \right)^2 - A^2 \right] \times \left[1 + \ln \left(1 + B^{-1} \left(\langle D^{-1} \rangle_p + 2 \langle \kappa \rangle_p M_S^2 \right)^2 \right) \right] \quad (18)$$

$$\langle m^2 \rangle_T = (3/4) B (T/U)^2 \left(\langle D^{-1} \rangle_p + 2 \langle \kappa \rangle_p M_S^2 \right)^{-1} \times \left(\langle D^{-1} \rangle_p + 2 \langle \kappa \rangle_p M_S^2 + A \right)^{-1}. \quad (19)$$

Значения параметров функции Линдхарда A и B определялись из сопоставления результатов расчетов магнитной восприимчивости с экспериментальными данными (рис. 2). Параметры Дзялошинского–Мория, используемые в расчетах, были заимствованы из работы [2].

Концентрационная зависимость магнитного момента сплавов $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ в основном состоянии приведена на рис. 3. Полученная в настоящей работе зависимость локальной намагниченности от концентрации улучшает согласие с экспериментальными данными на концентрационных границах магнитоупорядоченной области, по сравнению с результатом $\text{LDA} + \text{DMFT}$ -расчетов [6].

Графики концентрационно-температурных зависимостей k построены на рис. 4. Анализ концентрационных зависимостей $\kappa(x)$ и $D(x)$ в рассматриваемой модели $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ показывает, что в основном состоянии геликоидальный ферромагнетизм в интервале от $x_1 = 0.05$ до $x_c = 0.65$ является термодинамически устойчивым, причем нулевыми флуктуациями можно пренебречь.

При концентрации x_c реализуется ферромагнетизм. Исчезновение геликоидального дальнего порядка при концентрации x_c сопровождается формированием стохастических концентрационных флуктуаций связанных с возникновением волн спиновой плотности, имеющих всевозможные значения волновых векторов \mathbf{q} (см. (14)). В области концентраций $x_c < x < x_2 (= 0.80)$ получаем,

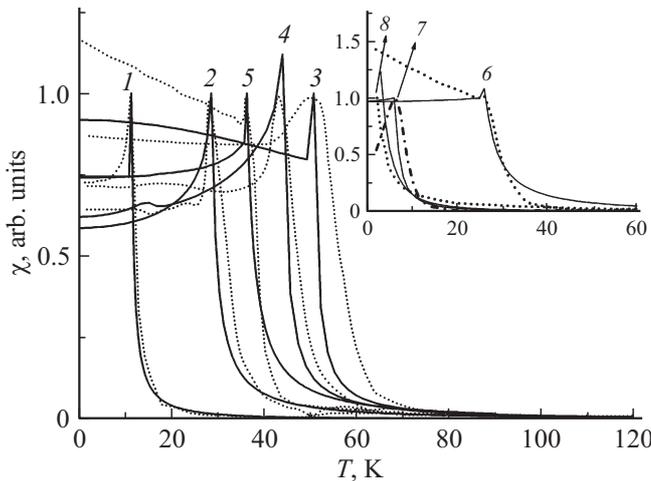


Рис. 2. Температурная зависимость магнитной восприимчивости $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, нормированная на максимальное значение. Пунктирная линия — экспериментальные данные [13], сплошная линия — расчет в настоящей работе: (1) — $x = 0.1$; (2) — $x = 0.2$; (3) — $x = 0.3$; (4) — $x = 0.4$; (5) — $x = 0.5$; (6) — $x = 0.6$; (7) — $x = 0.7$; (8) — $x = 0.8$. Параметр A для всех составов равен $1/12$, а параметр B : (1) — 3.9; (2) — 1.3; (3) — 0.95; (4) — 0.82; (5) — 0.98; (6) — 0.92; (7) — 0.82; (8) — 0.75. Уменьшение параметра $B (= (m^*/m_0)^{1/2})$ с увеличением концентрации x связано с уменьшением эффективной массы электронов (m^*) по мере удаления от запрещенной зоны.

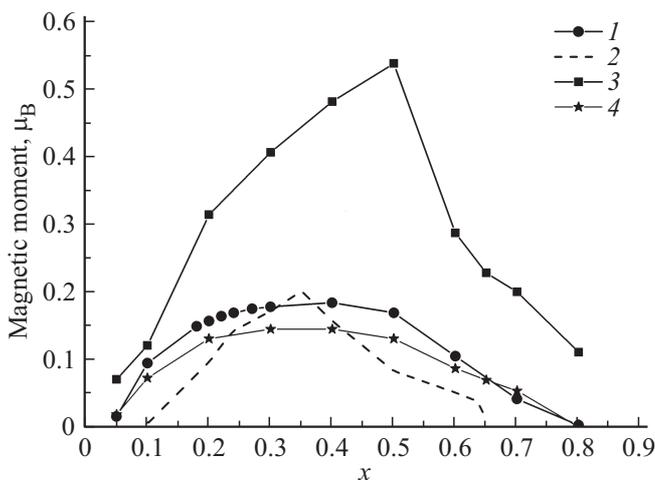


Рис. 3. Концентрационная зависимость магнитного момента сплавов $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ в основном состоянии: (1) — экспериментальные значения [15]; (2) — расчет магнитного момента в приближении LDA + DMFT [6]; (3) — расчет магнитного момента в приближении LSDA в настоящей работе; (4) — расчет в настоящей работе.

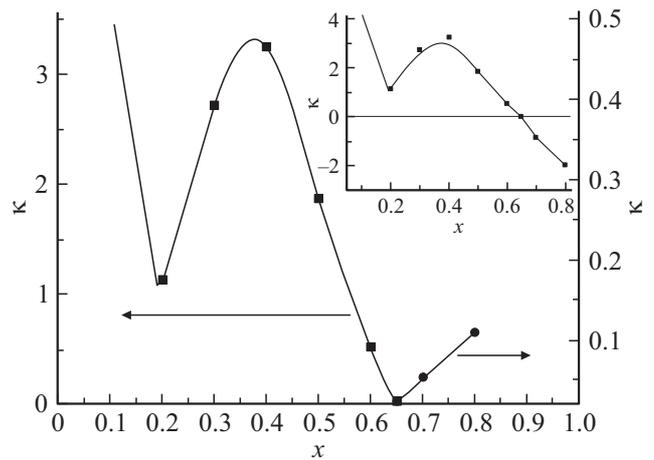


Рис. 4. Концентрационная зависимость параметра межмодового взаимодействия сплавов $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ в основном состоянии с учетом нулевых флуктуаций. На вставке: концентрационная зависимость параметра межмодового взаимодействия в основном состоянии без учета нулевых флуктуаций.

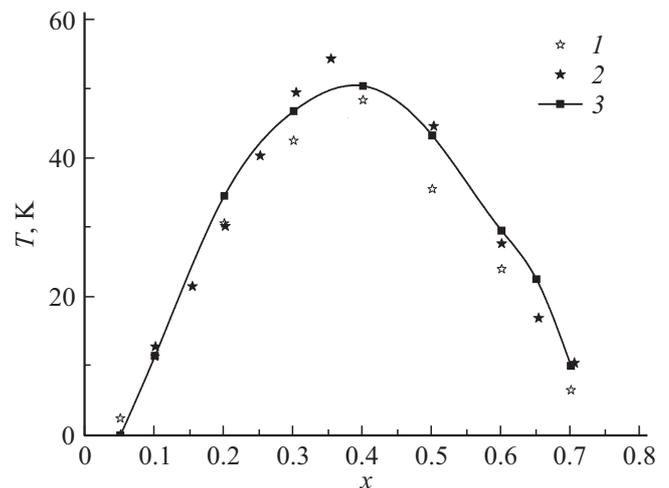


Рис. 5. Концентрационная зависимость температуры Кюри–Нееля (T_C): (1) — экспериментальные данные [13]; (2) — экспериментальные данные [14]; (3) — расчет в настоящей работе.

что наблюдаемое на эксперименте геликоидальное ферромагнитное состояние характеризуется правой киральностью спиновой спирали и может возникнуть только вследствие усиления нулевых спиновых флуктуаций.

Из уравнения (12) также следует, что при фазовом переходе первого рода (составы с $x = 0.2-0.5$) возникает область геликоидального ближнего порядка с ненулевой локальной намагниченностью (15). Температура исчезновения локальной намагниченности (T_S) в этом случае не совпадает с температурой Кюри–Нееля (T_C)

$$T_S^2 = T_C^2 + (4U^2A)^{-1} \left(U_{\text{Co}}^{1/2} - U_{\text{Fe}}^{1/2} \right)^2 d^2x(1-x),$$

что и наблюдается для составов с $0.20 < x < 0.50$. Для остальных магнитоупорядоченных составов с геликои-

дальним ферромагнетизмом фазовый переход в точке T_C не является переходом первого рода и сопровождается не скачкообразным исчезновением локальной намагниченности. Концентрационная зависимость температуры T_C приведена на рис. 5.

6. Заключение

В настоящей работе показано, что наряду с термодинамическим и квантовыми спиновыми флуктуациями в киральных ферромагнетиках на основе квазибинарных сплавов приходится рассматривать концентрационные флуктуации кулоновских потенциалов различных магнитоактивных атомов. При этом для построения самосогласованной процедуры учета таких флуктуаций следует рассматривать не LSDA + U + SO модель, а „стартовать“ от LDA + U + SO приближения для энергетического электронного спектра основного состояния. Используя такой спектр в гамильтониане Хаббарда, расширенном учетом двух типов внутриатомного кулоновского взаимодействия, можно рассмотреть основные особенности концентрационно-температурных зависимостей магнитных свойств киральных ферромагнетиков $Fe_{1-x}Co_xSi$ с кристаллической структурой B20. Полученные концентрационные зависимости локальных намагниченностей улучшают согласие с экспериментальными зависимостями на концентрационных границах магнитоупорядоченной области, по сравнению с результатом LDA + DMFT-расчетов [6]. Полученные с учетом LDA + U + SO расчетов концентрационные зависимости температур переходов и температурные зависимости магнитных восприимчивостей находятся в согласии с экспериментом.

В рамках развитого подхода описаны реализуемые в данной системе дальние геликоидальные ферромагнитные порядки с разным знаком киральности, причем при концентрации, при которой такое изменение киральности происходит, имеет место изменение знака параметра межмодовой связи и реализуется область, описываемая сильным спиновым ферромагнитным ближним порядком. При „включении“ в таком ферромагнитном состоянии ДМ-взаимодействия могут возникать либо флуктуации спиновой спирали, либо, как в рассмотренном случае, геликоидальный ферромагнетизм с противоположным знаком магнитной киральности.

Рассмотрены концентрационные области, в которых имеют место температурные фазовые переходы первого рода и возможно возникновение флуктуаций спиновых спиралей. Следует ожидать [15], что во внешнем магнитном поле именно в этих концентрационных областях будут возникать скирмионные фазы. Однако в отличие от квантовых геликоидальных ферромагнетиков $MnSi$, $Fe_{1-x}Mn_xSi$ [11,17] возникновение таких фаз не будет сопровождаться скачками амплитуд нулевых спиновых флуктуаций. Поэтому представляет интерес сравнительный анализ тройных диаграмм магнитных состояний: температура–магнитное поле–концентрация, для $Fe_{1-x}Co_xSi$ и $Fe_{1-x}MnSi$.

Финансирование работы

Результаты были получены в рамках задания министерства образования и науки Российской Федерации, контракт 3.9521.2017/8.9.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] J. Beille, J. Voiron, F. Towfiq, M. Roth, Z.Y. Zhang. *J. Phys. F* **11**, 2153 (1981).
- [2] С.В. Григорьев, В.А. Дядькин, С.В. Малеев, D. Menzel, J. Schoenes, D. Lamago, Е.В. Москвин, Н. Eckerlebe. *ФТТ* **52**, 852 (2010).
- [3] S.-A. Siegfried, E.V. Altynbaev, N.M. Chubova, V. Dyadkin, D. Chernyshov, E.V. Moskvina, D. Menzel, A. Heinemann, A. Schreyer, S.V. Grigoriev. *Phys. Rev. B* **91**, 184406 (2015).
- [4] M. Janoschek, M. Garst, A. Bauer, P. Krautscheid, R. Georgii, P. Boni, C. Pfleiderer. *Phys. Rev. B* **87**, 134407 (2013).
- [5] M.P.J. Punkkinen, K. Kokko, M. Ropo, I.J. Väyrynen, L. Vitos, B. Johansson, J. Kollar. *Phys. Rev. B* **73**, 024426 (2006).
- [6] 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).
- [7] А.А. Повзнер, А.Г. Волков, Т.А. Ноговицына. *ФТТ* **60**, 227 (2018).
- [8] V.I. Anisimov, J. Zaanen, O.K. Andersen. *Phys. Rev. B* **44**, 943 (1991).
- [9] J. Hubbard. *Proc. Roy. Soc. A* **276**, 238 (1963).
- [10] J.A. Hertz, M.A. Klenin. *Phys. Rev. B* **10**, 1084 (1974).
- [11] А.А. Повзнер, А.Г. Волков, Т.А. Ноговицына. *Physica B Condens. Mater.* **536**, 408 (2018).
- [12] S.V. Grigoriev, D. Chernyshov, V.A. Dyadkin, V. Dmitriev, S.V. Maleyev, E.V. Moskvina, D. Menzel, J. Schoenes, Н. Eckerlebe. *Phys. Rev. Lett.* **102**, 037204 (2009).
- [13] Y. Onose, N. Takeshita, C. Terakura, H. Takagi, Y. Tokura. *Phys. Rev. B* **72**, 224431 (2005).
- [14] П.В. Гельд, А.А. Повзнер, Л.Ф. Ромашева. *ДАН СССР* **265**, 1379 (1982).
- [15] А.А. Povzner, A.G. Volkov, T.M. Nuretdinov. *Solid State Commun.* **298**, 113640 (2019).
- [16] А.А. Повзнер, А.Г. Волков, Т.М. Нуретдинов. *ФТТ* **61**, 630 (2019).

Редактор Ю.Э. Кутаев