

КРИТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ В ДИНАМИЧЕСКОЙ ТЕОРИИ СПИНОВЫХ ФЛУКТУАЦИЙ

Н. Б. Мельников^{a*}, А. С. Гуленко^a, Б. И. Резер^b

^a Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова
119991, Москва, Россия

^b Институт физики металлов им. М.Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук
620108, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 15 июля 2022 г.,
после переработки 4 августа 2022 г.
Принята к публикации 8 августа 2022 г.

Парамагнитная восприимчивость и корреляционная функция спиновой плотности исследуются с помощью динамической теории спиновых флуктуаций вблизи температуры Кюри T_C . Рассчитанные критические индексы восприимчивости и корреляционного радиуса для Fe, Co и Ni находятся в разумном согласии со значениями, полученными на основе измерений объемной восприимчивости и экспериментов по нейтронному рассеянию. Показано, что степенной закон в критической области имеет место при температурах до $1.10\text{--}1.15 T_C$, что дает оценку области критических температур в ферромагнитных металлах.

Статья представлена в рамках публикации материалов VIII Евроазиатского симпозиума «Тенденции в магнетизме» (EASTMAG-2022), Казань, август 2022 г.

DOI: 10.31857/S0044451023010042
EDN: NNBRPG

1. ВВЕДЕНИЕ

Парамагнитные свойства ферромагнитных металлов обычно описываются в двух различных температурных интервалах: при температурах значительно выше температуры Кюри T_C , где обратная восприимчивость подчиняется линейному закону Кюри–Вейсса, и в критической области непосредственно вблизи T_C , где имеет место степенная зависимость [1–3]. Однако нет теории, способной предсказать экспериментальные значения критических индексов и определить точку перехода между критическим поведением и законом Кюри–Вейсса [4, 5].

Все теории среднего поля, включая динамические [6–9], дают одно и то же значение критического индекса для парамагнитной восприимчивости: $\gamma = 1$ (закон Кюри–Вейсса). Расчеты парамагнитной восприимчивости “из первых принципов”, используя

эти эффективные гамильтонианы с классическими спинами, также не дают отклонения от закона Кюри–Вейсса [10–12].

Приложения теории ренормгруппы ограничены либо простыми моделями с локализованными спинами, такими как модели Изинга или Гейзенберга [13], либо низкотемпературными магнитными фазовыми переходами в магнетиках с коллективизированными электронами [14–16].

Гауссово приближение можно использовать для изучения критического поведения металлов, если флуктуации не слишком велики. Другими словами, гауссово приближение применимо при температурах, не слишком близких к T_C , например, в железе при $(T - T_C)/T_C > 0.01$ [17]. Приближение случайных фаз (ПСФ) [18] и теория Гинзбурга–Ландау [19] описывают гауссовы флуктуации, используя только среднее поле, и дают те же значения для критических индексов восприимчивости $\gamma = 1$ и корреляционного радиуса $\nu = 1/2$, что и теория среднего поля (подробнее см., например, [20]). Динамическая теория спиновых флуктуаций (ДТСФ) [21] использует оптимальное гауссово приближение, которое описывает флуктуации с помощью самосогла-

* E-mail: melnikov@cs.msu.ru

сованного усреднения по гауссовым конфигурациям поля.

Мы используем ДТСФ для расчета критических показателей парамагнитной восприимчивости и корреляционного радиуса в Fe, Co и Ni, а также для оценки области критических температур в ферромагнитных металлах.

Работа имеет следующую структуру. В разд. 2 мы исследуем парамагнитную восприимчивость и сравниваем рассчитанный критический индекс со значениями, полученными на основе измерений объемной восприимчивости и экспериментов по нейтронному рассеянию. В разд. 3 мы изучаем корреляционную функцию, вычисляем критический индекс корреляционного радиуса и сравниваем его с экспериментальным значением, полученным в нейтронном рассеянии. В разд. 4 приводим основные выводы.

2. МАГНИТНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ

В ДТСФ электрон-электронное взаимодействие заменяется взаимодействием электронов с флуктуирующим обменным полем. Парамагнитная неусиленная восприимчивость $\chi_{\mathbf{q}}^0(\varepsilon)$ определяется выражением

$$\chi_{\mathbf{q}m}^0 = -\frac{1}{2} \left\langle \frac{\partial^2 F_1(V)}{\partial V_{\mathbf{q}m} \partial V_{-\mathbf{q}-m}} \right\rangle,$$

где

$$F_1(V) = -T \ln \text{Tr} e^{-H_0/T} - T \text{Tr} \ln G^0 + T \text{Tr} \ln G(V)$$

— свободная энергия невзаимодействующих электронов в поле V , выраженная через функцию Грина

$$G(V) = (\varepsilon + \mu - H_0 - V)^{-1}.$$

Здесь μ — химический потенциал, H_0 — сумма кинетической и потенциальной энергий невзаимодействующих электронов и $G^0 = (\varepsilon + \mu - H_0)^{-1}$. Среднее значение $\langle \dots \rangle$ по всем конфигурациям поля V вычисляется самосогласованно при каждой температуре (подробнее см. [21]).

Усиленная восприимчивость $\chi_{\mathbf{q}}(\varepsilon)$ выражается через неусиленную восприимчивость $\chi_{\mathbf{q}}^0(\varepsilon)$ по формуле

$$\chi_{\mathbf{q}}(\varepsilon) = \frac{\chi_{\mathbf{q}}^0(\varepsilon)}{1 - \tilde{u} \chi_{\mathbf{q}}^0(\varepsilon)},$$

где $\tilde{u} = u/N$ (u — константа взаимодействия, N — число электронов). Отметим отличие этого выражения от выражения в ПСФ [18], где неусиленная восприимчивость определяется только одной конфигу-

рацией обменного поля, минимизирующей свободную энергию:

$$\chi_{\mathbf{q}m}^0 \Big|_{RPA} = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2 F_1(\bar{V})}{\partial V_{\mathbf{q}m} \partial V_{-\mathbf{q}-m}}.$$

Выражение в ПСФ для $\chi_{\mathbf{q}}^0(\varepsilon)$ представляет собой просто сдвинутую функцию Лидхарда без поправки за счет собственной энергетической части. Применение ПСФ к критическому рассеянию дало хорошее согласие с экспериментом в железе, но не в никеле [18].

Однородную статическую восприимчивость можно аппроксимировать законом Кюри – Вейсса

$$\chi = \frac{m_{eff}^2}{3k_B(T - \Theta_C)} \quad (1)$$

в широком диапазоне температур выше T_C . В ДТСФ статическая однородная восприимчивость $\chi_0(0)$ измеряется в единицах $g^2 \mu_B^2/2$ и ее связь с восприимчивостью Кюри – Вейсса (1) задается соотношением $\chi = N^{-1} \chi_0(0) g^2 \mu_B^2/2$. Эффективный момент m_{eff} и парамагнитная температура Кюри Θ_C , рассчитанные в ДТСФ, хорошо согласуются с измерениями объемной намагниченности для всех трех ферромагнитных металлов [22]. Рассчитанная парамагнитная температура Кюри Θ_C на 7–8% больше, чем ферромагнитная температура Кюри T_C , что свидетельствует об отклонении обратной восприимчивости от прямой вблизи T_C . При температурах до 1.10–1.15 T_C обратная восприимчивость $\chi_0^{-1}(0)$ подчиняется степенному закону

$$\chi^{-1} \propto (T - T_C)^\gamma. \quad (2)$$

Чтобы получить значение критического показателя γ из расчетов ДТСФ, мы используем результаты для обратной восприимчивости в логарифмической шкале (см. рис. 1). Для сравнения с экспериментом мы берем макроскопическую массовую восприимчивость χ_g , которая связана с микроскопической восприимчивостью χ уравнением $\chi = \rho \Omega_{WS} \chi_g$, где ρ — плотность металла, Ω_{WS} — объем элементарной ячейки Вигнера – Зейтца. Как видно из рисунка, разумное согласие достигается для всех трех ферромагнитных металлов. Расчетные значения критического индекса γ (от 1.04 T_C до 1.12 T_C) в Fe, Co и Ni представлены в табл. 1.

Точка, где две температурные зависимости (1) и (2) сближаются, указывает на конец критической области. Эта точка составляет около 1.10–1.15 T_C для Co и Ni. В Fe критическая область простирается до конца α -фазы. Эти результаты согласуются с

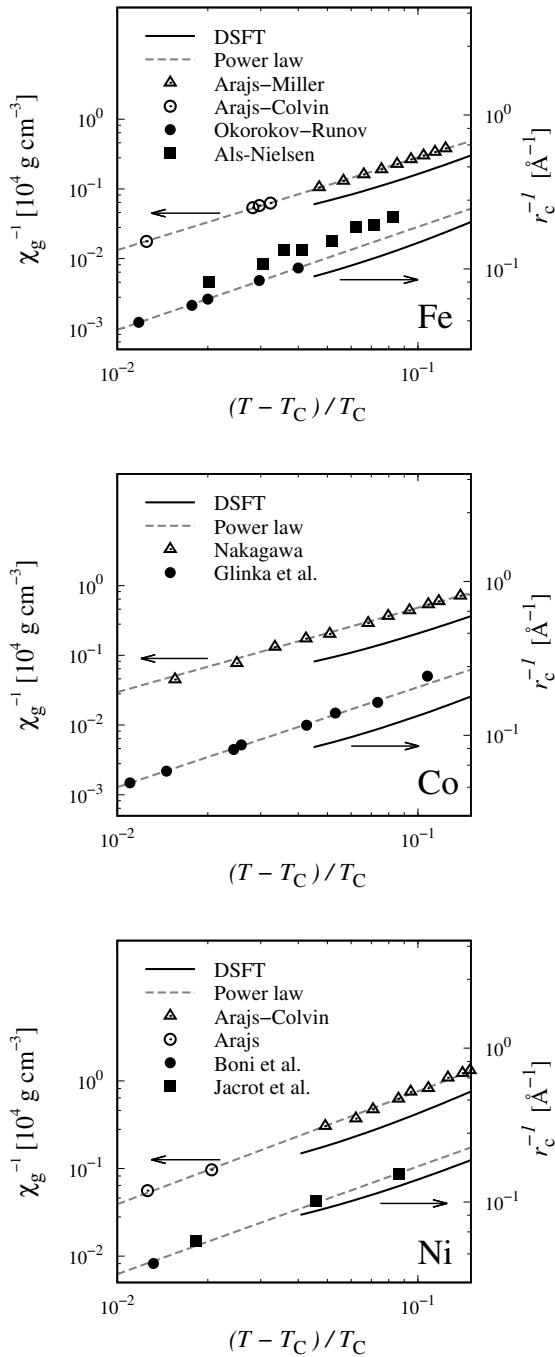


Рис. 1. (Левая ось) Обратная массовая восприимчивость Fe, Co и Ni в логарифмической шкале, рассчитанная в ДТСФ и полученная из эксперимента в Fe [23, 24], Co [25] и Ni [24, 26]. Красная штриховая линия — степенной закон (2) с параметрами, отвечающими эксперименту. (Правая ось) Обратный корреляционный радиус Fe, Co и Ni в логарифмической шкале, рассчитанный в ДТСФ и полученный из эксперимента в Fe [27, 28], Co [29] и Ni [30, 31]. Красная штриховая линия — степенной закон (6) с параметрами, отвечающими эксперименту

Таблица 1. Критические показатели γ для Fe, Co и Ni, рассчитанные в ДТСФ и полученные в эксперименте

	ДТСФ	Эксперимент
Fe (ОЦК)	1.35 ± 0.03	1.33 [24] 1.33 ± 0.02 [32] [†]
Co (ГЦК)	1.24 ± 0.03	1.21 ± 0.04 [33] 1.23 ± 0.05 [29] [†]
Ni (ГЦК)	1.26 ± 0.03	1.29 ± 0.03 [26] $1.315(15)$ [34] [†]

[†] Эксперимент по нейтронному рассеянию.

тем, что относительная разность пара- и ферромагнитной температур Кюри $(\Theta_C - T_C)/T_C$ в Fe больше, чем в Co и Ni [22].

3. КОРРЕЛЯЦИОННАЯ ФУНКЦИЯ

Вблизи фазового перехода второго рода при конечных температурах термодинамическое поведение нечувствительно к квантовомеханическим эффектам, и ферромагнетик можно успешно моделировать в классическом (статическом) приближении. Действительно, корреляционная длина увеличивается до бесконечности в точке фазового перехода, т.е. становится намного больше, чем масштаб длины, на котором важны квантовые эффекты (см., например, [20]). Следовательно, для расстояний, больших по сравнению с межатомным расстоянием, и температур, близких к T_C , спиновый коррелятор $C(r)$ может быть аппроксимирован формулой Орнштейна – Цернике

$$C(r) \propto \frac{1}{r} e^{-r/r_c}, \quad (3)$$

где r_c — корреляционный радиус. Это выражение было получено сначала для магнетиков с локализованными спинами в модели Гейзенберга [35], затем для магнетиков с коллективизированными электронами в модели электронного газа [18] и, наконец, для ферромагнитных металлов в ДТСФ [36]. Вблизи T_C зависимость корреляционного радиуса r_c от температуры описывается степенным законом

$$r_c \propto (T - T_C)^{-\nu}. \quad (4)$$

Теория среднего поля, ПСФ и теория Гинзбурга – Ландау дают значение критического показателя $\nu = 1/2$ (см., например, [18, 20]).

Значения ν , полученные из экспериментов по критическому рассеянию нейтронов в металлах, существенно отличаются от $\nu = 1/2$. Критическое рассеяние нейтронов в основном анализируется с помощью приближения квазиупругого рассеяния, что приводит к формуле Орнштейна–Цернике. Параметры в формуле Орнштейна–Цернике получают с помощью аппроксимации экспериментальных результатов. Поскольку спиновую корреляционную функцию $C(r)$ нельзя измерить непосредственно, удобнее использовать ее преобразование Фурье $C(q)$, которое пропорционально интенсивности рассеяния нейтронов. При малых q функцию $C(q)$ можно аппроксимировать фурье-образом коррелятора Орнштейна–Цернике (3), который имеет лоренцеву форму:

$$C(q) \propto \frac{1}{\kappa^2 + q^2}, \quad (5)$$

где κ — обратный корреляционный радиус r_c^{-1} . Из уравнения (4) следует

$$\kappa \propto (T - T_C)^\nu. \quad (6)$$

Экспериментальные значения для ν , полученные с помощью аппроксимации обратного корреляционного радиуса κ степенным законом (6), представлены в табл. 2. Как и в случае с γ , экспериментальное значение ν для кобальта ниже, чем для железа и никеля.

Таблица 2. Критические показатели ν для Fe, Co и Ni, рассчитанные в ДТСФ и полученные в эксперименте

	ДТСФ	Эксперимент
Fe (ОЦК)	0.67 ± 0.03	0.67 ± 0.01 [27]
Co (ГЦК)	0.61 ± 0.03	0.65 ± 0.04 [29]
Ni (ГЦК)	0.62 ± 0.03	0.701 ± 0.004 [37]

В ДТСФ коррелятор спиновой плотности $C(q) = \langle s_{\mathbf{q}} s_{-\mathbf{q}} \rangle$ вычисляется с помощью теории линейного отклика:

$$\langle s_{\mathbf{q}} s_{-\mathbf{q}} \rangle = \frac{1}{2\pi} \int B(\varepsilon) \text{Im} \chi_{\mathbf{q}}(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (7)$$

где $B(\varepsilon) = (e^{\varepsilon/T} - 1)^{-1}$ — функция Бозе. В статическом приближении флуктуационно-диссипационная теорема (7) принимает вид

$$\langle s_{\mathbf{q}} s_{-\mathbf{q}} \rangle = \frac{T}{2} \chi_{\mathbf{q}}(0),$$

где $\chi_{\mathbf{q}}(0)$ — статическая восприимчивость. При малых q получаем лоренцеву форму спинового коррелятора:

$$\langle s_{\mathbf{q}} s_{-\mathbf{q}} \rangle = \frac{NT}{2u\lambda_L} \frac{1}{a^2 + b^2(q/q_B)^2},$$

где q_B — “радиус” зоны Бриллюэна, а все остальные коэффициенты вычисляются самосогласованно при каждом T [36]. Таким образом, коррелятор $C(r)$ имеет форму Орнштейна–Цернике (3), где корреляционный радиус

$$r_c = |b|/(|a|q_B)$$

вычисляется самосогласованно в ДТСФ.

Рассчитанный нами корреляционный радиус находится в разумном согласии с полученным экспериментально в Fe, Co и Ni. На рисунке показано, что r_c^{-1} линейно зависит от приведенной температуры в логарифмической шкале в том же диапазоне температур, что и обратная восприимчивость. Прямая линия, полученная среднеквадратичной аппроксимацией рассчитанного r_c^{-1} как функции $(T - T_C)/T_C$ в логарифмической шкале, имеет почти тот же наклон, что и среднеквадратичная аппроксимация экспериментальных результатов (табл. 2). При температурах выше $1.15 T_C$ обратный корреляционный радиус в ДТСФ линейно растет с увеличением температуры для всех трех ферромагнитных металлов, как и обратная восприимчивость.

Напомним, что применение ДТСФ, основанной на гауссовом приближении, оправдано, если спиновые флуктуации достаточно малы (то же касается и теории Гинзбурга–Ландау, см., например, [17]). Это условие не выполняется в непосредственной близости от точки фазового перехода, где необходимо учитывать члены старших порядков в разложении свободной энергии по флуктуациям. Перенормированное гауссово приближение ДТСФ [38] учитывает члены третьего и четвертого порядков в разложении свободной энергии по флуктуациям. Расчеты обратной восприимчивости и корреляционной функции с использованием перенормированного гауссова приближения подтверждают результаты ДТСФ в диапазоне от $1.01 T_C$ до $1.10 T_C$. Для температур, близких к T_C , необходимо учитывать члены всех порядков в разложении свободной энергии. Построение такой теории представляет собой отдельную задачу. Однако при температурах около $1.1 T_C$ и выше ДТСФ дает удовлетворительное согласие с экспериментом и позволяет оценить критические индексы и определить верхнюю границу области критических температур.

Модификация лоренцевой формы спинового коррелятора (5) была получена в модели Гейзенберга [39]. В точке Кюри этот подход дает $C(q) \propto q^{-2+\eta}$, где η — критический показатель, определяющий поведение коррелятора при малых q . Однако в объемных металлах значения η небольшие: около 0.07 в Fe и 0.03 в Co [40], и лоренцева форма ($\eta = 0$) дает адекватное описание малоуглового критического рассеяния выше T_C [28, 29, 31].

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы показали, что в 3d-ферромагнитных металлах обратная парамагнитная восприимчивость и обратный корреляционный радиус следуют степенному закону в критической области до 1.10–1.15 T_C , а затем происходит переход к линейному закону Кюри–Вейсса. Результаты ДТСФ для критических индексов парамагнитной восприимчивости γ и корреляционного радиуса ν в Fe, Co и Ni дают заметное улучшение по сравнению с результатами ПСФ и теории Гинзбурга–Ландау и находятся в разумном согласии с экспериментом.

Финансирование. Исследование выполнено в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема “Quantum” № АААА-А18-118020190095-4).

ЛИТЕРАТУРА

1. E. P. Wohlfarth, *Iron, cobalt and nickel, in: Ferromagnetic Materials*, Vol. 1, North-Holland, Amsterdam (1980), p. 1.
2. S. Chikazumi, *Physics of Ferromagnetism*, Clarendon, Oxford (1997) [С. Тикадзуми, *Физика ферромагнетизма. Магнитные свойства вещества*, Мир, Москва (1987)].
3. R. M. White, *Quantum Theory of Magnetism*, Springer, Berlin (2007) [Р. М. Уайт, *Квантовая теория магнетизма*, Мир, Москва (1985)].
4. R. V. Chamberlin, *Nature* **408**, 337 (2000).
5. U. Köbler, *J. Magn. Magn. Mater.* **453**, 17 (2018).
6. A. I. Lichtenstein, M. I. Katsnelson, and G. Kotliar, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 067205 (2001).
7. K. Byczuk and D. Vollhardt, *Phys. Rev. B* **65**, 134433 (2002).
8. Y. Takehashi and M. A. R. Patoary, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 034706 (2011).
9. A. S. Belozеров, I. Leonov, and V. I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **87**, 125138 (2013).
10. J. B. Staunton and B. L. Gyorffy, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 371 (1992).
11. M. Uhl and J. Kübler, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 334 (1996).
12. A. V. Ruban, S. Khmelevskiy, P. Mohn, and B. Johansson, *Phys. Rev. B* **75**, 054402 (2007).
13. J. C. Le Guillou and J. Zinn-Justin, *Phys. Rev. B* **21**, 3976 (1980).
14. А. З. Паташинский, В. Л. Покровский, *Флуктуационная теория фазовых переходов*, Наука, Москва (1975).
15. J. A. Hertz, *Phys. Rev. B* **14**, 1165 (1976).
16. A. J. Millis, *Phys. Rev. B* **48**, 7183 (1993).
17. Р. Уайт, Т. Джебел, *Дальний порядок в твердых телах*, Мир, Москва (1982).
18. T. Izuyama, D. J. Kim, and R. Kubo, *J. Phys. Soc. Jpn.* **18**, 1025 (1963).
19. В. Л. Гинзбург, Л. Д. Ландау, *ЖЭТФ* **20**, 1064 (1950).
20. N. Goldenfeld, *Lectures on Phase Transitions and the Renormalization Group*, Taylor & Francis, Reading, MA (1992).
21. N. B. Melnikov and B. I. Reser, *Dynamic Spin Fluctuation Theory of Metallic Magnetism*, Springer, Berlin (2018).
22. N. B. Melnikov, G. V. Paradezhenko, and B. I. Reser, *J. Magn. Magn. Mater.* **525**, 167559 (2021).
23. S. Arajs and D. S. Miller, *J. Appl. Phys.* **31**, 986 (1960).
24. S. Arajs and R. V. Colvin, *J. Appl. Phys.* **35**, 2424 (1964).
25. Y. Nakagawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **11**, 855 (1956).
26. S. Arajs, *J. Appl. Phys.* **36**, 1136 (1965).
27. A. I. Okorokov and V. V. Runov, *Physica B* **297**, 239 (2001).
28. J. Als-Nielsen, in *Phase Transitions and Critical Phenomena*, Vol. 5a, Academic, London (1976), p. 88.
29. C. J. Glinka, V. J. Minkiewicz, and L. Passell, *Phys. Rev. B* **16**, 4084 (1977).
30. B. Jacrot, J. Konstantinovic, G. Parette, and D. Cribier, in *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, Vol. II, IAEA, Vienna (1963), p. 317.

31. P. Böni, J.L. Martinez, and J.M. Tranquada, *Phys. Rev. B* **43**, 575 (1991).
32. N. Stüsser, M.T. Rekveldt, and T. Spruijt, *Phys. Rev. B* **31**, 5905 (1985).
33. R. V. Colvin and S. Arajs, *J. Phys. Chem. Sol.* **26**, 435 (1965).
34. N. Stüsser, M.T. Rekveldt, and T. Spruijt, *Phys. Rev. B* **33**, 6423 (1986).
35. L. Van Hove, *Phys. Rev.* **95**, 1374 (1954).
36. N.B. Melnikov and B.I. Reser, *J. Magn. Magn. Mater.* **397**, 347 (2016).
37. R. Anders and K. Stierstadt, *Sol. St. Commun.* **39**, 185 (1981).
38. N.B. Melnikov, B.I. Reser, and V.I. Grebennikov, *J. Phys.: Condens. Matter* **23**, 276003 (2011).
39. D.S. Ritchie and M.E. Fisher, *Phys. Rev. B* **5**, 2668 (1972).
40. D. Bally, B. Grabcev, M. Popovici, M. Totia, and A.M. Lungu, *J. Appl. Phys.* **39**, 459 (1968).