

ELECTRONIC STRUCTURE AND PROPERTIES

PACS numbers: 71.10.Fd, 71.20.Be, 71.27.+a, 71.28.+d, 71.55.Jv, 75.10.Lp

Нанорозмірні області однорідного магнітного впорядкування в атомарно розупорядкованих бінарних ОЦК-стопах заміщення з сильними електронними кореляціями

Є. Г. Лен^{*,**}, В. В. Лізунов^{*}, Т. Д. Шатній^{*}, М. В. Ушаков^{*},
Т. С. Лен^{***}, Є. А. Цапко^{*}, А. О. Білоцька^{*}

^{*}Інститут металофізики ім. Г. В. Курдюмова НАН України,
бульв. Академіка Вернадського, 36,
03142 Київ, Україна

^{**}Київський академічний університет НАН України та МОН України,
бульв. Академіка Вернадського, 36,
03142 Київ, Україна

^{***}Національний авіаційний університет,
просп. Космонавта Комарова, 1,
03058 Київ, Україна

В роботі запропоновано теоретичну модель для опису тенденцій до формування локальних областей однорідного магнітного упорядкування в бінарних стопах заміщення з сильними електронними кореляціями, в яких тип та розмір таких областей визначаються переважно змінами електронної структури. До таких систем відносяться, зокрема, стопи на основі перехідних металів. Проведено числові розрахунки в узагальненій моделі Хаббарда для визначення областей магнітної однорідності при 0 К в цілком атомарно розупорядкованих ОЦК-стопах. Показано, що навіть за не-

Corresponding author: Evgen Georgiyovych Len
E-mail: len@imp.kiev.ua

^{*}G. V. Kurdyumov Institute for Metal Physics, N.A.S. of Ukraine,
36 Academician Vernadsky Blvd., UA-03142 Kyiv, Ukraine

^{**}Kyiv Academic University, N.A.S. of Ukraine and MES of Ukraine,
36 Academician Vernadsky Blvd., UA-03142 Kyiv, Ukraine

^{***}National Aviation University,
1 Kosmonavt Komarov Ave., UA-03058 Kyiv, Ukraine

Citation: E. G. Len, V. V. Lizunov, T. D. Shatnii, M. V. Ushakov, T. S. Len, E. A. Tsapko, and A. O. Bilots'ka, Nanosize Regions of Homogeneous Magnetic Ordering in Atomically Disordered Binary Substitutional B.C.C. Alloys with Strong Electron Correlations, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **42**, No. 3: 289–306 (2020) (in Ukrainian), DOI: [10.15407/mfint.42.03.0289](https://doi.org/10.15407/mfint.42.03.0289).

змінних величин електронної концентрації та потенціалу кулонівського відштовхування електронів на одному вузлі можливі зміни як типу, так і в широких межах розмірів областей однорідної намагніченості за рахунок лише зміни концентрації компонент стопу. Більше того, за певних концентрацій компонент стопу можливі обмеження на допустимі типи магнітного упорядкування порівняно з однокомпонентними системами. Поведінка багатокомпонентних магнітних кристалів є суттєво більш складною, а її опис має враховувати основні аспекти взаємного впливу атомної і магнітної підсистем через підлаштування під них електронної структури та їх під електронну структуру, що не лише висуває додаткові вимоги до відповідних теоретичних підходів, а й відкриває перспективи удосконалення та розвитку деяких традиційних та нових методів діагностики магнітних систем, зокрема, нейтронної та позитронної спектроскопій.

Ключові слова: магнітні стопи, сильні електрон-електронні кореляції, електронна структура, магнітна фазова діаграма, параметри магнітного упорядкування, область однорідного магнітного упорядкування.

In this work, a theoretical model is proposed to describe the tendencies for the formation of local regions of homogeneous magnetic ordering in binary substitutional alloys with strong electron correlations, in which the type and size of such regions are determined mainly by changes in the electronic structure. Such systems include, in particular, transition metals alloys. Numerical calculations are performed in the generalized Hubbard model to determine the magnetic homogeneity regions at 0 K in fully atomically disordered b.c.c. alloys. As shown, even with constant values of electron concentration and Coulomb repulsion potential of electrons at one site, the changes of both type and sizes (in wide range) of homogeneous magnetization regions are possible due to only changes in the concentration of alloy components. Moreover, at certain concentrations of the alloy components, restrictions on the permissible types of magnetic ordering are possible in comparison with one-component systems. The behaviour of multicomponent magnetic crystals is significantly more complex. For their description, one should take into account the main aspects of the mutual influence of the atomic and magnetic subsystems by adjusting the electronic structure. This not only puts additional requirements to the relevant theoretical approaches, but also opens prospects to improve and develop some traditional and novel methods of magnetic systems diagnosis, in particular neutron and positron spectroscopies.

Key words: magnetic alloys, strong electronic correlations, electronic structure, magnetic phase diagram, parameters of magnetic order, region of homogeneous magnetic order.

В работе предложена теоретическая модель для описания тенденций формирования локальных областей однородного магнитного упорядочения в бинарных сплавах замещения с сильными электронными корреляциями, в которых тип и размер таких областей определяются преимущественно изменениями электронной структуры. К таким системам относятся, в частности, сплавы на основе переходных металлов. Проведены численные

расчёты в обобщённой модели Хаббарда для определения областей магнитной однородности при 0 К в полностью атомарно разупорядоченных ОЦК-сплавах. Показано, что даже при неизменных величинах электронной концентрации и потенциала кулоновского отталкивания электронов на одном узле возможны изменения как типа, так и в широких пределах размеров областей однородной намагниченности за счёт только изменения концентрации компонент сплава. Более того, при определённых концентрациях компонент сплава возможны ограничения на допустимые типы магнитного упорядочения по сравнению с однокомпонентными системами. Поведение многокомпонентных магнитных кристаллов существенно более сложное, а его описание должно учитывать основные аспекты взаимного влияния атомной и магнитной подсистем через подстройку под них электронной структуры и их под электронную структуру, что не только выдвигает дополнительные требования к соответствующим теоретическим подходам, но и открывает перспективы совершенствования и развития некоторых традиционных и новых методов диагностики магнитных систем, в частности, нейтронной и позитронной спектроскопий.

Ключевые слова: магнитные сплавы, сильные электрон-электронные корреляции, электронная структура, магнитная фазовая диаграмма, параметры магнитного упорядочения, область однородного магнитного упорядочения.

(Отримано 28 лютого 2020 р.)

1. ВСТУП

Доменна структура магнітних матеріалів тісно пов'язана з їх суттєвими для практичних застосувань властивостями, що обумовлює важливість вивчення процесів її формування. Це стимулювало створення та розвиток великої кількості експериментальних високороздільних методів дослідження магнітних доменів, зокрема, магнітної силової мікроскопії, спіно-поляризованої тунельної мікроскопії та ін. Проте, зазначені експериментальні методи переважно дозволяють дослідити або магнітні домени у тонких плівках, або поверхневі магнітні домени в об'ємних зразках. При цьому експериментальне дослідження магнітних доменів, особливо антиферомагнітних, в глибині масивних непрозорих матеріалів є достатньо складною задачею [1–3]. Нейтронна спектроскопія дозволяє досліджувати об'ємні магнітні матеріали [4], але інтерпретація її результатів потребує певних модельних уявлень щодо природи появи магнітних моментів та типу їх упорядкованості у вузлах кристалічної ґратниці. Актуальною задачею залишається й розвиток інших чутливих до електронної структури експериментальних методів, наприклад, методу електронно-позитронної анігіляції [5], з метою їх поширення на дослідження магнітних властивостей матеріалів. Для цього важливим є створення теоретичних методів опису магні-

тних властивостей матеріалів з врахуванням взаємозв'язку їх атомної та магнітної підсистем.

Побудова таких теоретичних моделей ускладнюється тим, що для великої кількості магнітних матеріалів, зокрема, для перехідних металів та сплавів на їх основі, характерними є сильні електронні кореляції [6, 7], що робить незастосовними прості підходи, які базуються на уявленнях як про повністю колективізовані електрони [8, 9], так і про цілком локалізовані магнітні моменти [2, 10].

Зазвичай про магнітні властивості матеріалів з сильними електронними кореляціями якісно судять спираючись на добре досліджені магнітні фазові діаграми (МФД) однокомпонентних сильно-корельованих систем. Такі МФД, побудовані у різних підходах, мають багато спільних рис, одна з яких — це їхня симетрія відносно половинного заповнення зони [6, 7]. Проте системи з сильними електронними кореляціями здебільшого є багатокомпонентними, а, як було показано в попередніх роботах авторів [11, 12], навіть у найпростішому випадку бінарних сплавів має місце порушення такої симетрії МФД. В даній роботі в рамках узагальненої однозонної моделі Хаббарда для неупорядкованих сплавів з сильними електронними кореляціями встановлюється зв'язок між електронною структурою неупорядкованого бінарного ОЦК-сплаву заміщення та просторовими характеристиками його магнітної структури.

2. ТЕОРЕТИЧНІ ВІДОМОСТІ

Підхід, викладений у [11, 12], авторами раніше було застосовано до розгляду впливу потенціалу домішкового розсіяння W та концентрацій компонентів на МФД бінарних ОЦК-сплавів заміщення. У вказаних роботах детально описано метод розрахунку густини електронних станів та спосіб побудови МФД. Тут лише зазначимо, що 2D-МФД було побудовано у координатах (U, n) при $T = 0$ К, де U — параметр кулонівського відштовхування електронів з протилежними спінами на одному вузлі, n — середня електронна концентрація; рівноважні значення параметра парних магнітних кореляцій ϵ_m в орієнтації магнітних моментів на сусідніх вузлах та значення самих магнітних моментів μ_λ^\pm , локалізованих на атомах сорту $\lambda = [A, B]$, визначались шляхом мінімізації вільної енергії з врахуванням зміни електронної структури досліджуваного бінарного сплаву при зміні його параметрів. Зазначимо, що при виділенні внеску саме електронної підсистеми з урахуванням сильних електронних кореляцій у збільшення чи зменшення областей однорідного магнітного упорядкування не враховується вплив атомного упорядкування, магнітокристалічної анізотропії, магнітопружного ефекту, спонтанного далекого магнітного упорядкування та виграшу в магнітостатичній енергії через утворення та дезорієнтацію магніт-

них доменів. Тобто розгляд, проведений в даній роботі, обмежений лише врахуванням близького магнітного упорядкування в атомарно розупорядкованих стопах, в яких замість сукупності мікроскопічних магнітних доменів розглядаються нанорозмірні області однорідного магнітного впорядкування. Навіть при врахуванні далеких атомного і магнітного порядків даний метод передбачає розгляд впливу електронної структури на той чи інший тип упорядкування в межах лише одного домена. При цьому переважаючий внесок у магнітне упорядкування саме електронної структури може спостерігатися на експерименті, наприклад, у системах з сильними електрон-електронними кореляціями, до яких можна віднести й магнітні стопи на основі перехідних металів. Найбільш близькими до розглядуваної тут задачі були б такі стопи, що швидко загартовані від температур, вищих як за температуру Кюрі, так і за температуру Курнакова, коли тенденції до того чи іншого типу магнітного упорядкування та ступінь його поширення на сусідні вузли визначаються переважно конкуренцією між локалізацією електронів внаслідок електрон-електронних кореляцій та їх делокалізацією через рух по вузлах кристалічної ґратниці з урахуванням випадкового потенціалу розсіювання на атомах різного сорту.

На рисунку 1 представлено, як приклад, двовимірну МФД у змінних $U-n$ атомарно розупорядкованого бінарного ОЦК-стопу заміщення з сильними електрон-електронними кореляціями, яка є перерізом тривимірної МФД (у змінних $U-n-P_0^A$) площиною, що перпендикулярна осі концентрації компонента A та проходить через точку на цій осі $P_0^A = 0,5$. Зазначимо, що в роботі [12] було отримано набір подібних МФД для різних значень P_0^A , дані з яких щодо типу магнітного упорядкування за певних значень величин U , n , P_0^A використано нижче, однак аналіз величини параметру магнітного порядку проводиться тут вперше. Розподіл розрахованих рівноважних значень параметра парних кореляцій в орієнтації магнітних моментів на сусідніх вузлах відображається у вигляді різних областей на МФД згідно наступних правил: при відмінних від нуля значеннях локалізованих магнітних моментів на розглядуваному вузлі ($m_\lambda \neq 0$) значенню $\varepsilon_m = -0,25$ відповідає повне антиферомагнітне впорядкування (AFM), а значенню $\varepsilon_m = 0,25$ — повне феромагнітне впорядкування (FM); при меншій кореляції в орієнтації локалізованих магнітних моментів на сусідніх вузлах реалізуються стани або з неповним антиферомагнітним ($-0,25 < \varepsilon_m < 0$; s-AFM), або з неповним феромагнітним ($0 < \varepsilon_m < 0,25$; s-FM) впорядкуванням — ці стани утворюють перехідну область, яка розділена пунктирною лінією, що відповідає стану спінового скла (SG), для якого $\varepsilon_m \cong 0$ при $m_\lambda \neq 0$; парамагнітна фаза (P) характеризується значеннями локалізованих магнітних моментів $m_\lambda = 0$.

Варто відмітити, що в околі точок перетину ліній на МФД можна

за допомогою малої зміни електронної концентрації n переходити між трьома магнітними станами системи (пара-, феро- і антиферомагнітним), але це питання потребує окремого більш ретельного дослідження поведінки МФД в околі зазначених точок. Крім того, оскільки параметром теорії є середня концентрація електронів на атом $n \equiv \langle Z \rangle = Z_A x_A + Z_B x_B$, то побудовані для ізовалентних ($Z_A = Z_B$) стопів МФД у змінних $U-n$ дозволяють оцінити також просторові характеристики магнітної структури стопів з $Z_A \neq Z_B$ за рахунок переміщення зі зміною n між МФД, розрахованими для різних концентрацій P_0^A компонента А стопу (тобто шляхом одночасного узгодженого зміщення по 3D-МФД одразу вздовж осей електронної та атомної концентрацій); тут Z_λ — валентність атома сорту λ у перерахунку на одну ефективну зону, x_λ — концентрація атомів сорту λ (за відсутності далекого атомного упорядкування $P_0^A = x_\lambda$).

Умовна ймовірність $P_{j0}^{m_{j\lambda}}$ знайти у вузлі j локалізований магнітний момент з проекцією $m_{j\lambda}$ за умови, що у вузлі 0 знаходиться локалізований магнітний момент з проекцією m_λ , пов'язана з параметром парних магнітних кореляцій $\varepsilon_{j0}^{\mu_j \mu_\lambda}$ співвідношенням:

$$P_{j0}^{m_{j\lambda}/m_\lambda} = P_j^{m_{j\lambda}} \pm \varepsilon_{j0}^{\mu_j \mu_\lambda} / P_0^{m_\lambda}, \quad (1)$$

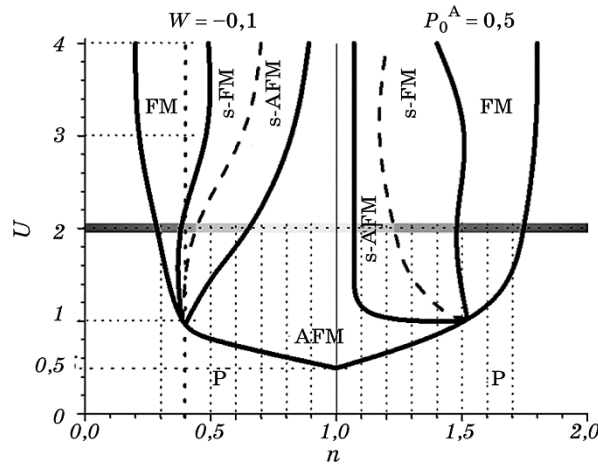


Рис. 1. Поперечний переріз 3D МФД в змінних $U-n-P_0^A$ площиною, перпендикулярною осі концентрації компонента А, яка перетинає цю вісь в точці $P_0^A = 0,5$, для бінарного атомарно розупорядкованого ОЦК-стопу заміщення з потенціалом розсіяння $W = -0,1$ [12].

Fig. 1. The cross-section of 3D magnetic phase diagram in variables $U-n-P_0^A$ by plane perpendicular to the axis of concentration of component A that intersects this axis at a point $P_0^A = 0,5$ for binary substitutional atomically disordered b.c.c. alloys with scattering potential $W = -0,1$ [12].

де знак «+» перед другим доданком відповідає збігу знаків проєкцій магнітних моментів m_λ і $m_{\lambda'}$ (наприклад, як для $P_{j0}^{\mu_j^+/\mu_j^-}$), які локалізовані на сусідніх вузлах 0 і j відповідно, а знак «-» — різним знакам цих величин (наприклад, як для $P_{j0}^{\mu_j^+/\mu_j^-}$). Знехтувавши кореляціями в орієнтації магнітних моментів на трьох та більше вузлах кристалічної ґратниці [13], середній розмір областей однорідної намагніченості атомарно розупорядкованого стопу можна оцінити з умови:

$$1/2 = (P_{j0}^{m_{\lambda'}/m_\lambda})^{k_{\uparrow\downarrow}}, \quad (2)$$

де значення $k_{\uparrow\downarrow}$ (від 1 до ∞) для феромагнетика задають кількості вузлів від центрів областей однорідної намагніченості вздовж (\uparrow) і проти (\downarrow) осі квантування до границь цих областей, а для антиферомагнетика — знак проєкції локалізованого магнітного момента на нульовому (центральному) вузлі та кількість вузлів від цього вузла до границі області однорідного антиферомагнітного упорядкування. Відповідні границі задаються відстанню, на якій ймовірність знайти магнітний момент певного знаку дорівнюватиме 0,5. У формулі (2) при обчисленні значення k_{\uparrow} для феромагнетика слід покласти $m_{\lambda'} = m_\lambda = \mu_\lambda^+$, а при обчисленні k_{\downarrow} — $m_{\lambda'} = m_\lambda = \mu_\lambda^-$. Для антиферомагнетика при обчисленні значення k_{\uparrow} слід покласти в (2) $m_\lambda = \mu_\lambda^+$, $m_{\lambda'} = \mu_\lambda^-$, а при обчисленні k_{\downarrow} — $m_\lambda = \mu_\lambda^-$, $m_{\lambda'} = \mu_\lambda^+$. Орієнтація магнітних моментів, яка відповідає випадку k_{\downarrow} для феромагнетика, обрана нами для визначення параметра парних магнітних кореляцій $\varepsilon_{j0}^{\mu_j^+/\mu_j^-} \equiv \varepsilon_m$. За відсутності зовнішнього магнітного поля (як це має місце в даній роботі) $P_0^{\mu_j^+} = P_0^{\mu_j^-} = 1/2$, $k_{\downarrow} = k_{\uparrow} = k$, а $\mu_\lambda^+ = -\mu_\lambda^-$.

Традиційні уявлення про антиферомагнетизм пов'язані з однаковими за величиною магнітними моментами на сусідніх вузлах, які належать магнітним підґратницям з протилежною орієнтацією цих моментів. Сумарна спонтанна намагніченість антиферомагнетиків дорівнює нулю. Певне ускладнення моделі антиферомагнетика, пов'язане з розглядом статичних або динамічних спінових хвиль, ситуацію принципово не змінює. Перехід до розгляду не лише різних за напрямком, а й різних за модулем магнітних моментів на різних магнітних підґратницях відповідає зміні типу магнітного упорядкування на ферімагнітне, яке характеризується невеликою спонтанною намагніченістю зразків. При цьому неявно передбачається й повне (далеке) атомне упорядкування ферімагнітних систем, оскільки різні за величиною магнітні моменти на «своїх» магнітних підґратницях пов'язані з атомами різного сорту, які також мають бути розподіленими по різних «своїх» атомних підґратницях, які будуть співпадати з магнітними. Це значно звужує спектр розглядуваних систем, обмежуючи його лише системами з далекими магнітним та атомним упорядкуваннями. Хоча очевидно,

що саме уявлення про повний далекий порядок є ідеалізацією, яка покликана лише спростити розгляд систем, що упорядковуються, за рахунок нехтування впливом нерегулярних варіацій локального оточення атомів різного сорту на структурні та електронні властивості системи. Врахування близького атомного та магнітного впорядкувань дозволяє певним чином виправити ситуацію з неявними обмеженнями, які накладаються не лише на ферімагнетики, а й на феро- та антиферомагнетики. Зазначимо, що в рамках підходів, які не враховують в явному вигляді електронну структуру, найбільш повний опис ефектів, що впливають на магнітне та атомне впорядкування бінарного стопу, а також на їх взаємний вплив, представлено в роботах [14–16].

В даній роботі ми не досліджуємо ефекти, спричинені порушеннями періодичності кристалічної будови (аморфізацією), обмежуючись розглядом лише безладу заміщення. Врахування близьких атомного і магнітного впорядкувань уможлиблює розгляд антиферомагнетизму в атомарно неупорядкованому стопі (лише з близьким порядком) без виділення атомних та магнітних кристалічних підґратниць. При цьому опис магнітного упорядкування буде вимагати задання лише параметрів парних кореляцій в орієнтації магнітних моментів на сусідніх вузлах, без врахування різниці в їх абсолютних величинах (μ_λ^+ , μ_λ^-), які, до речі, залежать від вищезазначених параметрів кореляції, сорту атома та визначають додатковий потенціал розсіяння електронів на вузлах, що займають відповідні атоми. Якщо має місце антиферомагнітне упорядкування без виділення підґратниць для магнітних моментів з протилежною орієнтацією або феромагнітне упорядкування, то ми будемо вживати термін «область однорідної намагніченості» для магнітних стопів, маючи на увазі область, у якій зберігається відповідний близький магнітний порядок. При цьому напрями магнітних моментів на сусідніх вузлах будуть, наприклад, для антиферомагнетика протилежними з ймовірністю, яка визначатиметься величиною $P_{j0}^{m_\lambda^+/m_\lambda^-}$ за формулою (1).

Отже, в загальному випадку відношення лінійного розміру d області однорідної намагніченості до періоду ґратниці a можна оцінити за допомогою виразу:

$$\frac{d}{a} = 2k = 2 \cdot \begin{cases} \ln(1/2)(\ln P_{j0}^{m_\lambda^+/m_\lambda^-})^{-1}, & \text{при } \varepsilon_m > 0 \text{ (s-FM, FM),} \\ 1, & \text{при } \varepsilon_m \cong 0 \text{ (SG),} \\ \ln(1/2)(\ln P_{j0}^{m_\lambda^-/m_\lambda^+})^{-1}, & \text{при } \varepsilon_m < 0 \text{ (s-AFM, AFM),} \end{cases} \quad (3)$$

де рівноважні значення $P_{j0}^{m_\lambda^+/m_\lambda^-}$ умовної ймовірності визначаються шляхом мінімізації вільної енергії стопів і є прямо пропорційними параметру парних кореляцій ε_m в орієнтації локалізованих магніт-

них моментів (1), які, як вже зазначалося, визначають розподіл станів на МФД стопів (див. рис. 1).

В роботі [12] було показано, що зміни концентрації електронів n та величини потенціалу кулонівського відштовхування U електронів на одному вузлі в повністю розупорядкованих ОЦК-стопках заміщення можуть в залежності від значень P_0^A визначати різні типи областей однорідної намагніченості. Як видно з рисунку 2, при цьому розміри відповідних областей однорідної намагніченості можуть змінюватися в широкому діапазоні значень, що відображає зміну ступеня кореляції в орієнтації локалізованих магнітних моментів на сусідніх вузлах.

Для феромагнетика і антиферомагнетика лінійні розміри областей однорідної намагніченості можуть змінювалися в межах від діаметру першої координаційної сфери до нескінченості, при цьому значення відповідних умовних ймовірностей $P_{j0}^{\mu_j^+/\mu_j^-}$ та $P_{j0}^{\mu_j^-/\mu_j^+}$ у (3) знаходяться в інтервалі $[0,5; 1]$. Як зазначалося вище, за реалізації феромагнітних кореляцій ($\epsilon_m > 0$) їх величину і протяжність у просторі визначає умовна ймовірність $P_{j0}^{\mu_j^+/\mu_j^-}$ знаходження на сусідніх вузлах локалізованих магнітних моментів одного знаку, а за реалізації антиферомагнітних кореляцій ($\epsilon_m < 0$) — умовна ймовірність $P_{j0}^{\mu_j^-/\mu_j^+}$ знаходження на сусідніх вузлах локалізованих магнітних моментів різних знаків. Величина $d/a = 2$ відповідає значенню $P_{j0}^{m_\lambda^+ / m_\lambda^-} = 1/2$ ($\epsilon_m = 0$), тобто цілком магнітно розупорядкованому стану з $m_\lambda \neq 0$ (стану спінового скла — SG). Отже, величина d , яку ми називаємо лінійним розміром області однорідного магнітного упорядкування, за визначенням є оцінкою знизу (через врахування лише парних кореляцій) відстані від розглядуваного вузла до границі, на якій зникають кореляції в орієнтації магнітних моментів на сусідніх вузлах. Таким чином, при $\epsilon_m = 0$ відстань, на якій ймовірність знайти локалізовані магнітні моменти різних знаків дорівнюватиме ймовірності (0,5) знайти локалізовані магнітні моменти одного знаку, буде задаватися радіусом першої координаційної сфери, а відповідний розмір області втрати кореляції — діаметром цієї сфери (тобто в цьому випадку кореляції в орієнтації магнітних моментів відсутні вже на найближчих сусідніх вузлах, а в середньому по кристалу має місце однорідний магніторозупорядкований стан). Для парамагнітного стану (P) значення локалізованих магнітних моментів на сусідніх вузлах дорівнюють 0, а тому параметри кореляції між ними є невизначеними величинами.

Також зазначимо, що розглядувані в даній роботі магнітні стопи за відсутності зовнішнього магнітного поля не будуть мати спонтанної намагніченості, оскільки кількості вузлів з однаковими за модулем, але з протилежними за знаком магнітними моментами, у кожному з них є фіксованими і однаковими.

3. РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Як впливає з викладеного вище, описувані формулою (3) області однорідної намагніченості не є класичними магнітними доменами. Їх розмір характеризує тенденцію до просторового поширення того чи іншого типу кореляцій в орієнтації локалізованих магнітних моментів на сусідніх вузлах ґратниці атомарно розупорядкованого бінарного стопу за рахунок впливу лише його електронної підсистеми, для якої характерні електрон-електронні кореляції.

Результати числових розрахунків для ізовалентних стопів з потенціалом домішкового розсіяння $W = -0,1$, наведені на рис. 2–4, демонструють вплив параметрів бінарного стопу на величину, обернену до розміру області однорідної намагніченості (a/d). В якості змінних параметрів моделі обрано енергетичний параметр кулонівського відштовхування електронів з протилежними спінами на одному вузлі U (рис. 2, а), середню електронну концентрацію n (рис. 2, б, 3) та концентрацію P_0^A ($P_0^B = 1 - P_0^A$) компонента А бінарного стопу (рис. 3, 4). Зауважимо, що при половинному заповненні зони ($n = 1$), коли модель Хаббарда зводиться до моделі Гейзенберга [6], розгляд даної задачі є еквівалентним розгляду залежності ефективного обмінного інтеграла антиферромагнітного типу від вищезазначених змінних характеристик стопу. По мірі відхилення значень n

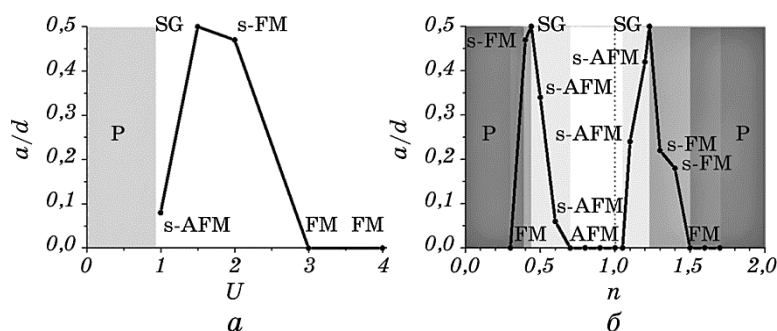


Рис. 2. Залежності величини a/d , що обернена до протяжності d області однорідного магнітного впорядкування у стопах з $W = -0,1$ та $P_0^A = 0,5$, від U при $n = 0,4$ (а) та від n при $U = 2$ (б). Графік (а) відповідає просуванню по рис. 1 вздовж вертикальної жирної точкової лінії, а графік (б) — просуванню по тому ж рисунку вздовж горизонтальної сірої смуги.

Fig. 2. Dependences of the quantity a/d , which is reciprocal to the size d of the homogeneous magnetic ordering regions in alloys with $W = -0.1$ and $P_0^A = 0.5$, from U at $n = 0.4$ (a) and from n at $U = 2$ (b). Plot (a) corresponds to the movement along the vertical bold dotted line and plot (b)—along the horizontal grey band at the Fig. 1.

від 1 з'являється і зростає внесок від делокалізованих станів і опис за допомогою обмінного інтеграла втрачає точність, а при наближенні до області парамагнетика (P) і сенс. При цьому, як було відмічено в попередніх роботах [11, 12], за обраних параметрів системи повне атомне розупорядкування пригнічує магнітне упорядкування, що призводить до порогового характеру появи антиферомагнітного упорядкування при зростанні кулонівського потенціалу за половинного заповнення (тобто при значеннях U , менших порогового, AFM упорядкування відсутнє), що можна також спостерігати на рис. 1 і 2, а. Однак даний ефект може бути й наслідком недооцінення ролі кореляцій в орієнтації магнітних моментів при неврахуванні далекого AFM порядку, тенденції до прояву якого є притаманними саме області половинного заповнення (це питання потребує окремого дослідження).

При переходах між парамагнітним та рештою магнітних станів завдяки змінам електронної структури стопів як локалізовані магнітні моменти, так і кореляції в їх орієнтаціях з'являються стрибкоподібно (рис. 2, б та 4), що характерно для фазових переходів другого роду. У той же час переходи між феро- (FM) та антиферомагнітним (AFM) станами відбуваються поступово зі зміною величини та знаку параметру парних кореляцій ϵ_m (через стан SG з $\epsilon_m = 0$). Це призводить до утворення областей однорідного магнітного впорядкування різних розмірів: від нанометрових областей, включаючи найближчих та наступних сусідів обраного атома (стани часткового магнітного впорядкування типу s-FM та s-AFM), до формально нескінченних областей однорідної намагніченості з максимально впорядкованими антиферо- та феромагнітними станами. При цьому в стопах втрачається симетрія відносно половинного заповнення зони як 2D-МФД (рис. 1), так і залежностей розмірів областей однорідного магнітного впорядкування (рис. 2, б та 4, в).

Різниця в атомних потенціалах розсіювання електронів призводить до неоднакового для атомів різного сорту розподілу зарядової і спінової густини, що проявляється у відмінностях величин локалізованих магнітних моментів на цих атомах і в зміні положень і ширин областей того чи іншого магнітного стану на МФД стопів в порівнянні з однокомпонентними системами. Завдяки зміні концентрації компонентів стопу деякі магнітні стани можуть навіть не реалізовуватися у стопах за певних значень P_0^A , як це має місце у нашому випадку для стану FM, що видно з поперечного перерізу 3D-МФД у змінних $U-n-P_0^A$ по площині з $U=2$, представленого на рис. 3 (див. точку з $n=0,2$ та $P_0^A=0,9$). Для однокомпонентної ж системи за фіксованих значень електронної концентрації та кулонівського потенціалу магнітний стан (точка на відповідній 2D-МФД), як і відповідний їй розмір області однорідного магнітного упорядкування, будуть незмінними, тобто описаний вище ефект

зникнення за певних значень P_0^A тих чи інших магнітних станів, як і зміна їх типу є неможливими.

Рівність валентностей компонентів дещо маскує ефекти впливу атомних потенціалу розсіювання і розупорядкування стопу на його магнітні властивості. Так, відповідна «траєкторія» на рис. 3 для ізовалентного стопу при зміні концентрації його компонент залишається на МФД переважно в області феромагнетизма. При цьому, зсуваючи подібну «траєкторію» вздовж осі електронної концентрації, можна домогтися більш-менш стабільного розміру областей однорідного магнітного впорядкування, причому за упорядкування переважно одного типу, наприклад, феромагнітного, як на рис. 3 та 4, а.

Зазначимо, що для однокомпонентної системи є неможливою не лише зміна типу магнітного упорядкування за незмінних значень n і U , а й навіть розміру області однорідного магнітного упорядкування. Однак ізовалентні стопи з фіксованим значенням U , що характеризуються незмінним значенням n при зміні P_0^A , показують суттєво більш складну поведінку саме через наявність концентра-

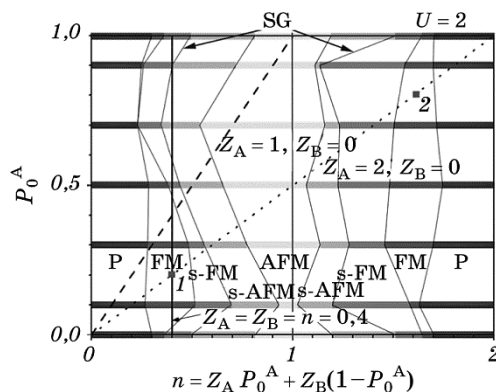


Рис. 3. 2D-МФД (у змінних $P_0^A - n$), яка є перерізом площиною $U = 2$ 3D-МФД (у змінних $U - n - P_0^A$) стопу з $W = -0,1$ (лінія перетину 2D-МФД у змінних $U - n$ площиною $U = 2$ представлена на рис. 1 сірою смугою). «Траєкторії», тобто вертикальна лінія при $n = 0,4$ та похилі штрихова і точкова лінії, що починаються в нулі, відповідають стопам, в яких змінюється концентрація P_0^A за різних значень Z_A і Z_B .

Fig. 3. 2D magnetic phase diagram (in variables $P_0^A - n$), which is a cross-section of 3D magnetic phase diagram (in variables $U - n - P_0^A$) by plane $U = 2$ for alloys with $W = -0.1$ (the intersection line of 2D magnetic phase diagram in variables $U - n$ with plane $U = 2$ is presented in Fig. 1 by horizontal grey band). The 'trajectories' (vertical solid line at $n = 0.4$, dashed and dotted lines started from zero) correspond to alloys with concentration P_0^A changing for different values of Z_A and Z_B .

ційної залежності їх магнітних властивостей: на рис. 4, *a* спостерігається значний розкид розмірів областей однорідного магнітного упорядкування і навіть зміна його типу в залежності від хімічного складу стопу.

Разом із ізовалентними стопами розглянемо також просторові характеристики магнітної структури стопів з $Z_A \neq Z_B$. На рисунку 4, *б*, *в* представлено концентраційні залежності розмірів областей однорідної намагніченості для випадків $Z_A = 1, Z_B = 0$ та $Z_A = 2, Z_B = 0$ відповідно (тут $n = Z_A P_0^A + Z_B (1 - P_0^A)$ — середня концентрація електронів на атом, представлена через концентрацію P_0^A компонента А стопу, а $Z_\lambda \in [0, 2]$ — число вільних електронів, що привносить до стопу атом сорту $\lambda = [A, B]$, перераховане на випадок однозонної моделі). Відразу зазначимо, що закономірності зміни типів та ступеня магнітних кореляцій в таких стопах зі зміною їх хімічного складу також не можуть бути в повній мірі змодельовані на основі розгляду 2D-МФД однокомпонентних систем, причиною чого є порушення симетрії МФД бінарних стопів як відносно половинного заповнення зони ($n = 1$), так і відносно рівних концентрацій компонент ($P_0^A = P_0^B = 0,5$) (рис. 3).

За відмінних валентностей атомів різних сортів, а саме, $Z_A = 1, Z_B = 0$ (див. відповідну «траєкторію» на рис. 3), стоп отримує можливість при збільшенні концентрації компонента А стрибком змінювати свій магнітний стан при виході з парамагнітного стану, а потім порівняно плавно змінювати феромагнітний стан на антиферомагнітний. Останні зміни супроводжуються спочатку зменшенням розмірів областей однорідного впорядкування при підході до області SG зі сторони FM, а потім їх збільшенням при віддаленні від

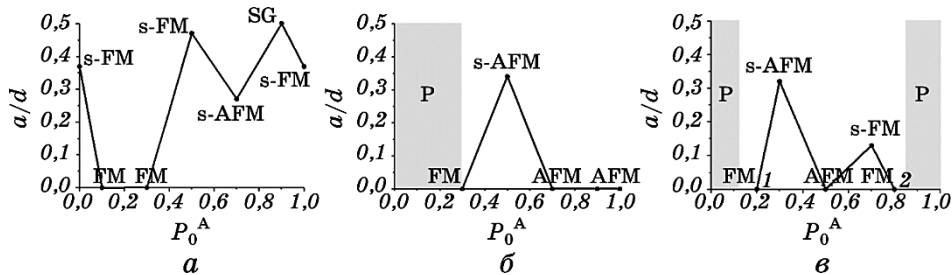


Рис. 4. Залежність величини a/d від P_0^A у випадку $W = -0,1$ та $U = 2$: для ізовалентного стопу ($Z_A = Z_B$) при $n = \text{const} = 0,4$ (*a*); для стопу при $Z_A = 1, Z_B = 0$ та $n = P_0^A$ (*б*); для стопу при $Z_A = 2, Z_B = 0$ та $n = 2P_0^A$ (*в*) (див. відповідні «траєкторії» на рис. 3).

Fig. 4. Dependences of the quantity a/d from P_0^A in the case $W = -0,1$ and $U = 2$: for isovalent alloys ($Z_A = Z_B$) at $n = \text{const} = 0.4$ (*a*); for alloys with $Z_A = 1, Z_B = 0$ and $n = P_0^A$ (*б*); for alloys with $Z_A = 2, Z_B = 0$ and $n = 2P_0^A$ (*в*) (see corresponding ‘trajectories’ on Fig. 3).

цієї межі вглиб області АФМ (див. рис. 3 і 4, б), яка в даному випадку обмежена максимальним значенням електронної концентрації $n = 1$. При цьому за мінімального значення P_0^A завжди спостерігатиметься парамагнітний стан, а максимальному значенню P_0^A за будь-яких значень U , більших за порогове, відповідатиме антиферомагнітне упорядкування.

Для стопу, валентності атомів якого дозволяють йому досягати значення електронної концентрації рівного 2 (випадок $Z_A = 2$, $Z_B = 0$), описана вище зміна розмірів областей однорідного магнітного порядку і типів самого магнітного впорядкування при наближенні до половинного заповнення зони в загальних рисах повторює поведінку, характерну для попереднього типу стопів, а після подолання половинного заповнення зміна магнітних стопів при збільшенні n відбувається в зворотному порядку (див. відповідну «траєкторію» на рис. 3). Такі стопи за мінімального і максимального значень P_0^A завжди знаходяться у парамагнітному стані. При цьому зміна розмірів областей однорідного магнітного впорядкування до і після половинного заповнення зони може суттєво відхилитися від дзеркально симетричної відносно точки $n = 1$ (рис. 3) та, відповідно, точки $P_0^A = 0,5$ (рис. 4, в), що має місце для однокомпонентних систем. Зауважимо, що через малу кількість точок на рис. 4, в нами були проведені додаткові розрахунки для областей 1 і 2 на МФД (рис. 3), дані по яких аналогічним чином позначено на рис. 4, в.

Таким чином, процеси домішкового розсіяння призводять до перерозподілу зарядової та спінової густини між атомами різного сорту й, відповідно, до різних значень локалізованих магнітних моментів на атомах різного сорту, які, в свою чергу, призводять до різного розщеплення домішкових зон на Хаббардові підзони за рахунок кулонівського потенціалу (U) відштовхування електронів на одному вузлі та до порушення симетрії густини електронних станів магнітних стопів відносно центра зони. Значний внесок у порушення такої симетрії вносить і різниця у концентраціях компонентів стопу. Відсутність симетрії у густині електронних станів проявляється в асиметрії 3D-МФД у змінних $U-n-P_0^A$ відносно як половинного заповнення зони ($n = 1$) (рис. 1, 3), так і рівної концентрації компонентів бінарного стопу ($P_0^A = P_0^B = 0,5$) (рис. 3).

Можливість адекватного аналізу поведінки локальних областей однорідного магнітного упорядкування та типу магнітних кореляцій в бінарних стопах заміщення з сильними електронними кореляціями, в яких тип та розмір таких областей визначаються переважно змінами електронної структури, уможлиблює також залучення представлених у цій та попередніх роботах авторів теоретичних методів та одержаних на їх основі результатів для інтерпретації даних таких потужних експериментальних підходів, як дифракція

нейтронів та позитронна спектроскопія, чутливих до особливостей електронної структури стопів.

4. ВИСНОВКИ

Проведені дослідження показали, що однокомпонентність системи істотно обмежує природне різноманіття МФД, а перехід навіть до найпростіших багатокомпонентних систем (бінарних стопів заміщення) істотно розширює як спектр доступних МФД, так і можливості «переміщення» між ними за рахунок зміни концентрацій компонент. Зміна основних параметрів теоретичної моделі — електронної концентрації n та величини потенціалу U кулонівського відштовхування електронів на одному вузлі, як правило, на практиці реалізується шляхом зміни хімічного складу (сортів атомів А і В) і концентрацій елементів ($P_0^{A,B}$), що, як показано в роботі, дозволяє змінювати тип та в широких межах розмір області однорідної намагніченості в цілком атомарно розупорядкованих ОЦК-стопках.

Показано, що для однокомпонентної системи є неможливою зміна типу і розміру області однорідного магнітного упорядкування за незмінних значень n і U , у той час як ізовалентні стопи з певним значенням U , що характеризуються незмінним значенням n при зміні P_0^A , показують суттєво більш складну поведінку саме через наявність концентраційної залежності їх магнітних властивостей. При цьому спостерігається значний розкид розмірів областей однорідного магнітного упорядкування і навіть зміна його типу в залежності від хімічного складу стопу. Показано, що у випадку бінарних стопів заміщення за певних значень P_0^A та валентностей компонент спостерігається ефект зникнення тих чи інших магнітних станів порівняно з однокомпонентними системами, навіть без врахування концентраційних обмежень на хімічний однофазний стан стопів. Отже, навіть якісні висновки на основі МФД однокомпонентних кристалів для більш складних систем є некоректними.

Встановлено, що при зміні концентрації компонент за рахунок зміни електронної структури стопів лише для переходу з парамагнітного стану у будь-який інший магнітний стан стрибком з'являються локалізовані магнітні моменти і, відповідно, кореляції у їх орієнтації, а переходи між феромагнітним (FM) та антиферомагнітним (AFM) станами відбуваються шляхом поступової зміни величини та знаку параметру парних кореляцій ε_m (через стан SG з $\varepsilon_m = 0$). Такі плавні переходи призводять при зміні параметрів системи до формування різних за розмірами областей однорідного магнітного упорядкування: від ангстремних до формально нескінчених (на практиці ж обмежених розмірами одного мезоскопічного магнітного домену, електронні властивості якого ми фактично й розглядаємо).

Оскільки валентності та концентрації компонент стопу визначають середнє значення електронної концентрації, що припадає на один атом, то концентраційні залежності типу магнітного упорядкування та розмірів областей його однорідності будуть суттєво відрізнятися для ізовалентних стопів та стопів з різними валентностями їх компонент. Так, для ізовалентних стопів через незмінність середньої концентрації електронів при зміні концентрації компонент переважно реалізуються магнітні стани одного типу. Однак, на відміну від однокомпонентних систем, ці стани характеризуються суттєвим розкидом рівноважних значень розміру областей однорідного магнітного упорядкування, а за певних значень концентрації компонента A змінюється й сам тип магнітних кореляцій. Для неізовалентних бінарних стопів концентраційна залежність магнітних характеристик є ще більш ярко вираженою, як і необхідність їх опису на основі $3D$ -МФД у змінних $U-n-P_0^A$, через їх «просування» зі зміною хімічного складу через принципово різні області $3D$ -МФД від парамагнітної через феромагнітну до антиферомагнітної (для стопів з максимальним значенням $n = 1$) та назад до парамагнітної (для стопів з максимальним значенням $n = 2$). Також показано, що основною рисою $3D$ -МФД бінарних стопів є порушення її симетрії як відносно половинного заповнення зони, так і відносно рівної концентрації компонент стопу.

Дослідження впливу локального оточення атомів на величину та орієнтацію їхніх магнітних моментів, а останніх характеристик через густину електронних станів та вільну енергію кристалу на саме локальне атомне оточення, відкривають шлях до більш повного розуміння закономірностей взаємного впливу атомного і магнітного впорядкувань та до розширення на цій основі спектру як розглядуваних магнітних систем (у т.ч. метастабільних), так і методів цілеспрямованої зміни їх електронних і структурних властивостей на етапі синтезу та методів керування цими властивостями на етапі експлуатації. Не менш перспективним є й удосконалення та розвиток на цій основі експериментальних підходів до діагностики магнітних матеріалів, зокрема, розширення можливостей нейтронної графії та адаптації для цих цілей унікального методу позитронної спектроскопії, який дозволяє в рамках єдиного експерименту одержувати інформацію як про структуру матеріалу, так і про його електронні властивості.

Роботу виконано в рамках Цільової програми фундаментальних досліджень НАН України «Перспективні фундаментальні дослідження та інноваційні розробки наноматеріалів і нанотехнологій для потреб промисловості, охорони здоров'я та сільського господарства» на 2020–2024 рр., проект № 22/20-Н.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. I. Manke, N. Kardjilov, R. Schäfer, A. Hilger, M. Strobl, M. Dawson, C. Grünzweig, G. Behr, M. Hentschel, C. David, A. Kupsch, A. Lange, and J. Banhart, *Nat. Commun.*, **1**: 125 (2010).
2. М. М. Фархтдинов, *Физика магнитных доменов в антиферромагнетиках и ферритах* (Москва: Наука: 1981).
3. A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic Domains. The Analysis of Magnetic Microstructures* (Springer: 2009).
4. М. А. Krivoglaz, *X-Ray and Neutron Diffraction in Nonideal Crystals* (Berlin: Springer: 1996).
5. P. Hautojarvi, *Topics in Current Physics. Positrons in Solids* (Berlin Heidelberg New York: Springer-Verlag: 1979).
6. Yu. A. Izyumov, *Phys. Usp.*, **38**: 385 (1995).
7. Yu. A. Izyumov and E. Z. Kurmaev, *Phys. Usp.*, **51**: 23 (2008).
8. Р. З. Левитин, А. С. Маркосян, *Успехи физических наук*, **155**: 623 (1988).
9. В. С. Михаленков, В. И. Токарь, Е. А. Цапко, *Український фізичний журнал*, **24**, № 10: 1552 (1979).
10. С. Тикадзуми, *Физика ферромагнетизма. Магнитные характеристики и практические применения* (Москва: Мир: 1987).
11. В. В. Лизунов, Е. Г. Лень, И. Н. Мельник, Н. В. Ушаков, Т. С. Лень, В. А. Татаренко, *Металлофиз. новейшие технол.*, **36**: 575 (2014).
12. В. В. Лизунов, Е. Г. Лень, Н. В. Ушаков, Т. С. Лень, В. А. Татаренко, *Металлофиз. новейшие технол.*, **37**: 1405 (2015).
13. С. П. Репецкий, Т. Д. Шатний, *Теоретическая и математическая физика*, **131**: 832 (2002).
14. Т. М. Радченко, В. А. Татаренко, *Успехи физ. мет.*, **9**, № 1: 1 (2008).
15. І. В. Вернигора, С. М. Бокоч, В. А. Татаренко, *Успехи физ. мет.*, **11**, № 3: 313 (2010).
16. S. M. Bokoch and V. A. Tatarenko, *Успехи физ. мет.*, **11**, № 4: 413 (2010).

REFERENCES

1. I. Manke, N. Kardjilov, R. Schäfer, A. Hilger, M. Strobl, M. Dawson, C. Grünzweig, G. Behr, M. Hentschel, C. David, A. Kupsch, A. Lange, and J. Banhart, *Nat. Commun.*, **1**: 125 (2010).
2. М. М. Farhtdinov, *Fizika Magnitnykh Domenov v Antiferromagnetikakh i Ferritah* [Physics of Magnetic Domains in Antiferromagnets and Ferrites] (Moscow: Nauka: 1981) (in Russian).
3. A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic Domains. The Analysis of Magnetic Microstructures* (Springer: 2009).
4. М. А. Krivoglaz, *X-Ray and Neutron Diffraction in Nonideal Crystals* (Berlin: Springer: 1996).
5. P. Hautojarvi, *Topics in Current Physics. Positrons in Solids* (Berlin Heidelberg New York: Springer-Verlag: 1979).
6. Yu. A. Izyumov, *Phys. Usp.*, **38**: 385 (1995).
7. Yu. A. Izyumov and E. Z. Kurmaev, *Phys. Usp.*, **51**: 23 (2008).
8. R. Z. Levitin and A. S. Markosjan, *Uspekhi Fizicheskikh Nauk*, **155**: 623 (1988)

- (in Russian).
9. V. S. Mihalenkov, V. I. Tokar', and E. A. Tsapko, *Ukrayins'kyi Fizychnyy Zhurnal*, **24**, No. 10: 1552 (1979) (in Russian).
 10. C. Tikadzumi, *Fizika Ferromagnetizma. Magnitnye Kharakteristiki i Prakticheskie Primeneniya* [Physics of Ferromagnetism. Magnetic Characteristics and Practical Applications] (Moscow: Mir: 1987) (in Russian).
 11. V. V. Lizunov, E. G. Len, I. M. Melnyk, M. V. Ushakov, T. S. Len, and V. A. Tatarenko, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **36**: 575 (2014) (in Russian).
 12. V. V. Lizunov, E. G. Len, M. V. Ushakov, T. S. Len, and V. A. Tatarenko, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **37**: 1405 (2015) (in Russian).
 13. S. P. Repetsky and T. D. Shatnii, *Theoretical and Mathematical Physics*, **131**: 832 (2002) (in Russian).
 14. T. M. Radchenko and V. A. Tatarenko, *Usp. Fiz. Met.*, **9**, No. 1: 1 (2008) (in Ukrainian).
 15. I. V. Vernyhora, S. M. Bokoch, and V. A. Tatarenko, *Usp. Fiz. Met.*, **11**, No. 3: 313 (2010) (in Ukrainian).
 16. S. M. Bokoch and V. A. Tatarenko, *Usp. Fiz. Met.*, **11**, No. 4: 413 (2010).