

Электронный топологический переход Лифшица и сложные магнитные структуры в тяжелых редкоземельных металлах

А.В. Андрианов

*Физический факультет, Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова
Воробьевы горы, г. Москва, 119991, Россия
E-mail: andr@mig.phys.msu.ru*

Статья поступила в редакцию 7 ноября 2013 г.

Рассмотрена определяющая роль геометрии поверхности Ферми в формировании длиннопериодических магнитных структур в тяжелых редкоземельных металлах. Показано, что эти металлы находятся на грани электронного топологического перехода Лифшица. Экспериментально подтверждено, что электронный топологический переход, вызванный упругой деформацией, приводит к изменению типа магнитного упорядочения. Установлена универсальная фазовая диаграмма «тип магнитного упорядочения — параметры a и c гексагональной плотноупакованной решетки» редкоземельных металлов, хорошо согласующаяся с результатами расчетов из первых принципов.

Розглянуто визначальну роль геометрії поверхні Фермі у формуванні довгоперіодичних магнітних структур у важких рідкісноземельних металах. Показано, що ці метали знаходяться на межі електронного топологічного переходу Лифшица. Експериментально підтверджено, що електронний топологічний перехід, який викликано пружною деформацією, призводить до зміни типу магнітного впорядкування. Встановлено універсальну фазову діаграму «тип магнітного впорядкування — параметри a та c гексагональної щільноупакованої ґратки» рідкісноземельних металів, що добре узгоджується з результатами розрахунків з перших принципів.

PACS: **71.18.+y** Поверхность Ферми; расчеты и измерения, эффективная масса, g -фактор;
71.20.Eh Редкоземельные металлы и сплавы;
75.30.Kz Магнитные фазовые границы (включая магнитные переходы, метамагнетизм и т.д.).

Ключевые слова: поверхность Ферми, магнитные фазовые переходы, электронная структура металлов, редкоземельные металлы, сложные магнитные структуры.

Предсказанные И.М. Лифшицем [1] электронные топологические переходы (ЭТП) обычно рассматриваются как красивые, но редкие явления, которые возможно наблюдать лишь в специально подобранных объектах при специальных условиях. Экспериментально изученные ЭТП в сплавах висмута и рения в системах LiMg и CdMg, в Al, Zn, Cd, As, In [2–13] наблюдаются, как правило, под давлением и/или при варьировании химического состава. Поэтому то, что магнитные свойства целого класса металлов — элементов периодической системы — напрямую определяются тем, что эти металлы находятся на грани ЭТП, оказалось неожиданным наблюдением. В статье дан обзор экспериментальных и теоретических исследований связи маг-

нетизма и геометрии поверхности Ферми (ПФ) в тяжелых редкоземельных металлах (ТРЗМ).

Тяжелые редкоземельные $4f$ -металлы с ГПУ кристаллической решеткой, от гадолиния до тулия, а также их твердые растворы с немагнитными иттрием, лютецием и скандием — классический пример системы, где магнитная и проводящая электронные подсистемы хорошо разделимы, магнитные моменты локальны, и магнитный обмен происходит за счет РККИ взаимодействия [14]. Эти металлы отличаются лишь количеством электронов на внутренней $4f$ -оболочке, поэтому обладают очень близкими (в пределах одного процента) параметрами кристаллической решетки. По той же причине они неограниченно растворяются друг в дру-

ге. Фактически проводящую систему ТРЗМ и их твердых растворов можно рассматривать как один и тот же объект, у которого незначительно варьируются параметры кристаллической решетки.

В свое время эти металлы были прославлены открытием в них длиннопериодических магнитных структур — геликоидальных, синусоидальных и т.п. [15,16]. Для этих структур характерен пространственный период, много больший шага кристаллической решетки и, как правило, несоизмерный с ней (слабые эффекты, связанные с соразмерностью, рассматриваться не будут). Соответственно, магнитный волновой вектор \mathbf{q} , параллельный гексагональной оси кристалла, примерно на порядок меньше размера зоны Бриллюэна и обычно плавно зависит от температуры. Поскольку магнитный обмен в этих металлах происходит по механизму РККИ, форма поверхности Ферми определяет значения обменных энергий и, следовательно, тип магнитного упорядочения и свойства магнитной структуры.

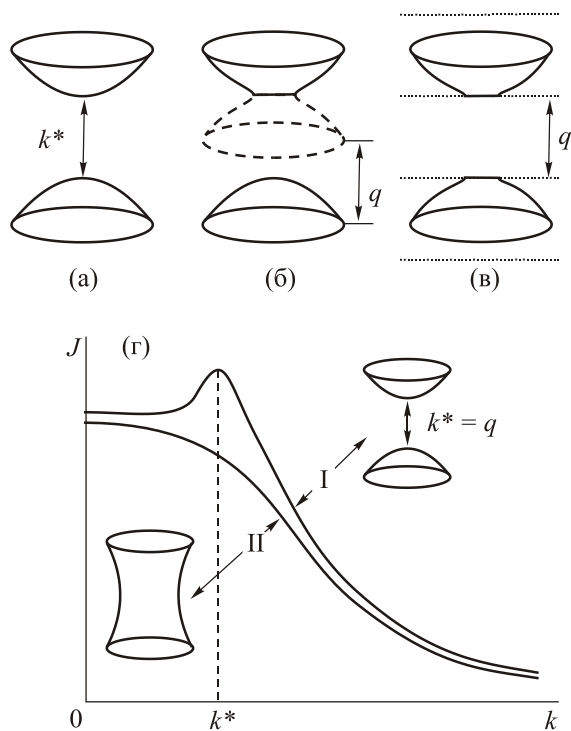


Рис. 1. Фрагмент поверхности Ферми с экстремальным диаметром k^* (а); наложение двух листов ПФ при трансляции на волновой вектор магнитной структуры \mathbf{q} (б); «прилипание» магнитной сверхзоны к экстремальному диаметру ПФ (в) эквивалентно (б); фурье-образы $J(\mathbf{k})$ обменной энергии $J(\mathbf{r})$ для РККИ обмена при наличии (I) и отсутствии (II) экстремального диаметра у поверхности Ферми в направлении \mathbf{k} (г). Вставки: вид ПФ с экстремальным диаметром k^* , действует механизм магнитного нестинга, \mathbf{q} — волновой вектор энергетически выгодной длиннопериодической магнитной структуры (I); отсутствие экстремального диаметра и магнитного нестинга, энергетически выгодна простая ферромагнитная структура (II).

Механизм образования длиннопериодических магнитных структур был предложен для хрома Ломером [17] и исчерпывающе рассмотрен для случая ТРЗМ Дзялошинским [18]. Это механизм «магнитного нестинга», основанный на том, что при трансляции на волновой вектор магнитной структуры \mathbf{q} один лист ПФ накладывается на другой, приблизительно параллельный, что приводит к выигрышу в энергии (см. рис. 1(б)). В других терминах это означает, что «сверхзона Бриллюэна» длиной \mathbf{q} , возникающая при взаимодействии длиннопериодической магнитной структуры с электронами проводимости, «прилипает» к экстремальному диаметру ПФ (см. рис. 1(в)). Таким образом, магнитный волновой вектор \mathbf{q} оказывается равным экстремальному диаметру ПФ k^* .

Для иллюстрации механизма «магнитного нестинга» принято также рассматривать фурье-образ обменного РККИ взаимодействия $J(\mathbf{k})$: если эта зависимость имеет максимум при $k^* \neq 0$, то энергетически выгодной оказывается магнитная структура с $q = k^*$, т.е. длиннопериодическая [14, стр. 115]. Значение k^* равно экстремальному диаметру ПФ, если таковой существует (см. рис. 1(г), I); если же его нет, то реализуется простая ферромагнитная структура (рис. 1(г), II). Следует подчеркнуть, что этот подход не эквивалентен анализу Дзялошинского, а ограничивается линейным приближением, тогда как роль нестинга может проявиться и в следующем приближении.

Таким образом, тип образующейся магнитной структуры — будет ли она длиннопериодической или же простой ферромагнитной — напрямую, причем очень простым образом, связан с геометрией ПФ. На рис. 2. показаны возможные формы ПФ в ТРЗМ: «типа иттрия» (рис. 2(а)), обладающую свойством магнитного нестинга, с экстремальным диаметром q , параллельным гексагональной оси, соответствующую длиннопериодической магнитной структуре, и «типа гадолиния» (рис. 2(б)) без такого диаметра, не проявляющую свойств нестинга и соответствующую простому ферромагнетизму. ПФ «типа иттрия» реализуется во всех ТРЗМ, кроме гадолиния, а также в иттрии, скандии и лютеции, а ПФ «типа гадолиния» — только в гадолинии и твердых растворах с большим содержанием гадолиния. Эти геометрии ПФ неоднократно перевычислялись на разных этапах прогресса расчетов из первых принципов, и результаты хорошо воспроизводятся. При этом вычисленный экстремальный диаметр k^* с приемлемой точностью равен экспериментально определенному магнитному волновому вектору \mathbf{q} для разных ТРЗМ, что убедительно подтверждает теорию магнитного нестинга [19–22]. В работе [23] методом аннигиляции позитронов было подтверждено, что ПФ твердых растворов гадолиний–иттрий действительно имеет форму «типа иттрия» и проявляет свойства нестинга, в полном соответствии с ожиданиями.

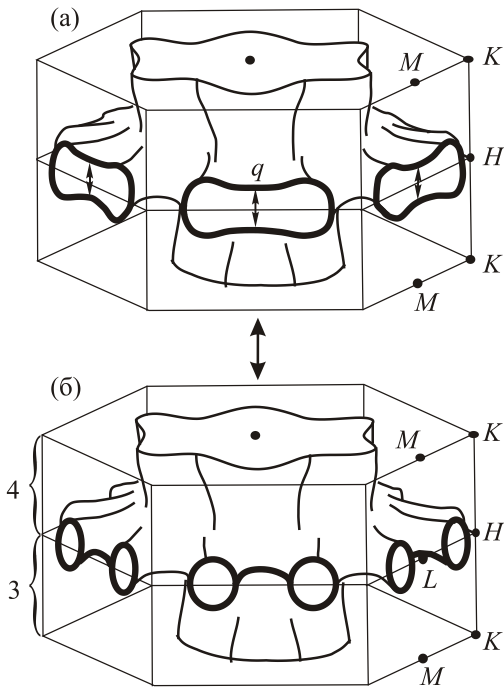


Рис. 2. Две возможные геометрии поверхности Ферми в ТРЗМ (двухзонное представление): «типа иттрия», с экстремальным диаметром, ответственным за магнитный нестинг (а); «типа гадолиния» (б). Цифрами указаны номера зон.

Некоторую интригу внесли новые достижения в технике фотоэлектронной спектроскопии (ARPES), позволяющие непосредственно определять геометрию ПФ в ТРЗМ. Определение ПФ гадолиния [24] и тербия [25] методом ARPES неожиданно показало, что сценарий ЭТП в ТРЗМ может существенно отличаться от указанного на рис. 2, подтвержденного многочисленными расчетами и экспериментами. Эти результаты пока не получили независимого подтверждения, и мы будем руководствоваться общепринятым сценарием.

Уже сам взгляд на рис. 2 приводит к мысли о возможности перехода от ПФ «типа иттрия» к «типа гадолиния» и обратно. Такой переход будет классическим ЭТП Лифшица типа «разрыв перемычки», причем перемычке соответствует поверхность «типа гадолиния», (ср. с рис. 1(г), II). Если учесть, что разница между этими геометриями обусловлена изменением параметров кристаллической решетки порядка всего лишь одного процента, оказывается практически очевидным то, что все ТРЗМ балансируют на грани ЭТП. Тем не менее, насколько нам известно, впервые это предположение было высказано нами [26]. Достоин внимания, что в книге [27] анализ Дзялошинского и переход Лифшица упоминаются в одном абзаце, но не связываются друг с другом.

Эта связь открывает перспективы наблюдения целого ряда эффектов, специфичных для ЭТП. Самая очевидная возможность перехода от топологии ПФ «типа иттрия» к топологии «типа гадолиния» либо наоборот — упругая деформация монокристалла ТРЗМ. С точки зрения магнетизма это будет означать «переключение» между магнитным упорядочением в длиннопериодическую структуру и, наоборот, в простую ферромагнитную структуру.

Для демонстрации этого эффекта были взяты два объекта: монокристаллы тербия и твердого раствора $Gd_{60}Ho_{40}$. При нормальных условиях тербий, имеющий ПФ «типа иттрия», упорядочивается в длиннопериодическую геликоидальную антиферромагнитную структуру при $T_N = 230$ К (и затем переходом первого рода переходит в простую ферромагнитную структуру), $Gd_{60}Ho_{40}$ упорядочивается ферромагнитно при $T_C = 220$ К и остается ферромагнитным до самых низких температур, что соответствует ПФ «типа гадолиния». Предполагалось, что надлежащей упругой деформацией обоих монокристаллов возможно добиться в каждом ЭТП и таким образом «обменять» эти поведения: заставить тербий вести себя как $Gd_{60}Ho_{40}$ и наоборот.

Поскольку требуется изменить топологию ПФ в гексагональном металле, наиболее эффективным будет варьировать отношение параметров c/a его кристаллической решетки, поскольку форма ПФ зависит в первую очередь от этого отношения и только в следующем порядке — от величины изотропной деформации. Поэтому следует создавать одноосную деформацию в направлении гексагональной оси. Расчет показывает, что ПФ «типа гадолиния» относится к большим значениям c/a , чем «типа иттрия», т.е. одноосное растяжение должно подавить геликоидальную фазу в Tb в пользу ферромагнитной, а одноосное сжатие подавить ферромагнитную фазу в $Gd_{60}Ho_{40}$ в пользу геликоидальной.

Эти ожидания были подтверждены экспериментально [28]. На рис. 3. показаны температурные зависимости магнитной восприимчивости Tb, измеренные при одноосном растяжении монокристалла. Видно, что «провал» между $T_N = 231$ К и $T_1 = 226$ К, соответствующий геликоидальной антиферромагнитной фазе, полностью подавляется давлением. Полученная из таких зависимостей магнитная фазовая диаграмма приведена на рис. 4(а), где растяжению соответствуют отрицательные давления. Видно, что значение критического давления, соответствующего подавлению геликоидальной фазы и, предположительно, ЭТП, составляет всего лишь -700 бар. На магнитной фазовой диаграмме это соответствует тройной точке, где встречаются парамагнитная, ферромагнитная и геликоидальная фазы.

Эксперимент на монокристалле $Gd_{60}Ho_{40}$ [29] показал, что одноосное сжатие приводит к появлению антиферромагнитного, предположительно геликоидаль-

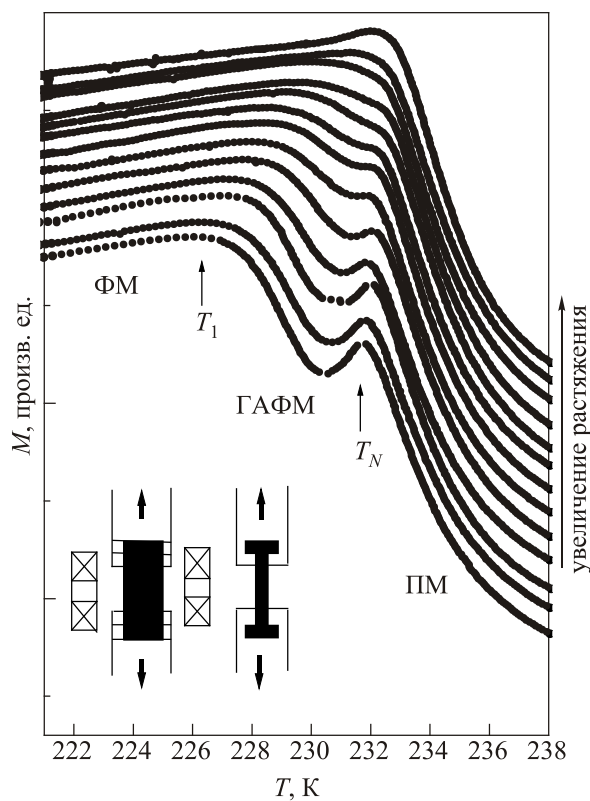


Рис. 3. Температурные зависимости магнитной восприимчивости монокристалла тербия, подвергаемого одноосному упругому растяжению. Нижняя кривая — атмосферное давление, верхняя — 700 бар. T_N — температура магнитного упорядочения, T_1 — температура перехода в ферромагнитную фазу. ПМ — парамагнитная, ФМ — ферромагнитная, ГАФМ — геликоидальная антиферромагнитная фазы. Вставка: схема эксперимента, два вида [28].

ного, упорядочения в изначально ферромагнитном образце.

Чтобы выделить роль параметров кристаллической решетки, на этих же образцах были проведены эксперименты под гидростатическим давлением, дающим практически изотропную деформацию [30,31]. Оказалось, что гидростатическое давление оказывает воздействие, аналогичное одноосному сжатию, но величина этого воздействия слабее примерно вчетверо, т.е. те же изменения магнитных свойств наблюдаются при много больших гидростатических давлениях, нежели одноосных. На рис. 4(б) приведена магнитная фазовая диаграмма Tb для гидростатического давления. Видно, что интервал температур, в котором существует геликоидальная фаза, достигает, например, значения 8 К (обозначено вертикальными стрелками) при одноосном давлении 1,4 кбар, а при гидростатическом — 5,5 кбар. Это также подтверждает предположение о доминирующей роли геометрии ПФ.

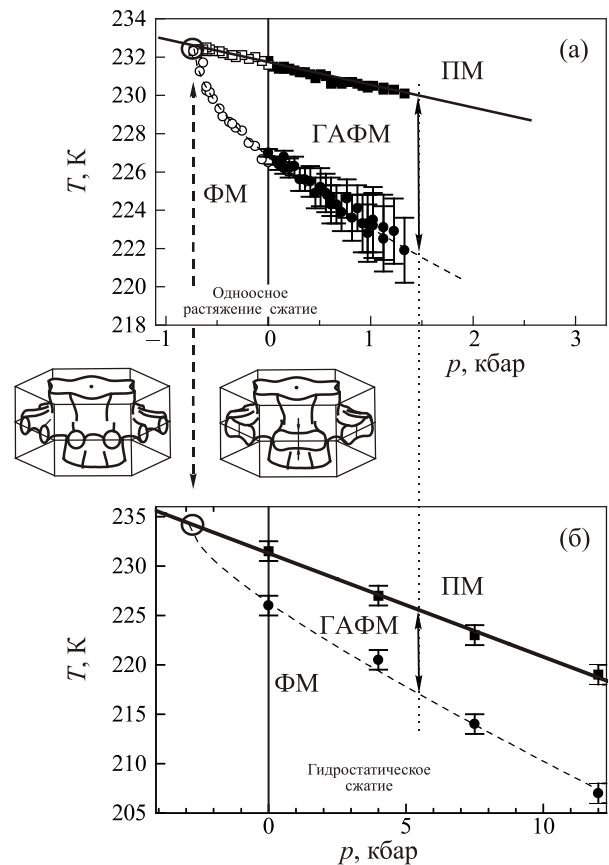


Рис. 4. Магнитные фазовые диаграммы тербия под одноосным растяжением/сжатием (а) и под гидростатическим сжатием (б) (из [30]). Температура Нееля T_N под растяжением (\square), под сжатием (\blacksquare); температура перехода в ферромагнитную фазу T_1 под растяжением (\circ), под сжатием (\bullet). Сокращения, как на рис. 3. Пунктир: подгонка по формуле $T_1 = T_N - A * (p - p^*)^{1/2}$. Горизонтальные шкалы выбраны так, чтобы для каждой общей вертикали интервал температур, в котором существует геликоидальная фаза, был одинаков для (а) и (б) (8 К для «точечной» линии, приведенной для примера). \odot — магнитные тройные точки (для графика (б) — экстраполяция). Жирный вертикальный пунктир соответствует ЭТП для обоих графиков. Вставки: соответствующие данным давлениям геометрии ПФ [30].

В это же время был сделан следующий шаг в развитии расчетов из первых принципов: метод local state density approximation (LSDA) позволяет непосредственно учитывать спиновые конфигурации при расчете электронных спектров. Результатом стал расчет универсальной для всех ТРЗМ фазовой диаграммы, указывающей расположение длиннопериодической и ферромагнитной фаз на плоскости «отношение c/a — радиус Вигнера–Зейца атомов ТРЗМ» [22].

Полученные нами результаты для Tb и $Gd_{60}Ho_{40}$ позволили экспериментально установить положение границы раздела между этими фазами и сравнить ее с полученной расчетом из первых принципов [32].

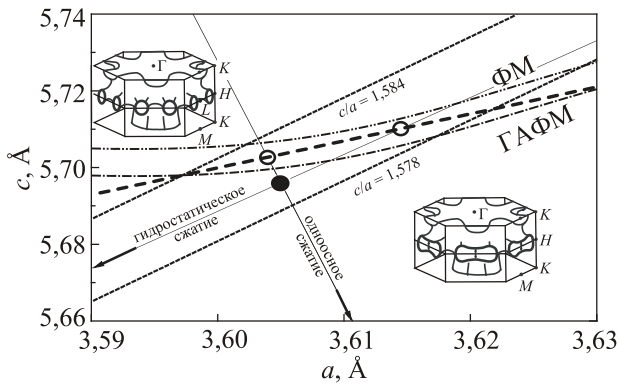


Рис. 5. «Кристалломагнитная» фазовая диаграмма тербия из [30]; (○) — магнитные тройные точки под одноосным и гидростатическим давлением (см. рис. 4); (●) — атмосферное давление. Сокращения, как на рис. 3. Стрелки показывают изменение параметров c и a под одноосным и гидростатическим сжатием соответственно. Пунктир — линии $c/a = \text{const}$, показаны для наглядности. Жирный пунктир соответствует границе раздела между ФМ и ГАФМ фазами и, по предположению, ЭТП. Штрихпунктирные линии: эта же граница раздела согласно расчетам из первых принципов [22]. Вставки: соответствующие данным параметрам решетки геометрии ПФ.

На рис. 5 жирным пунктиром показана экспериментально определенная граница раздела фаз для тербия, а штрихпунктирами — положение этой же границы согласно расчетам. И для положения, и для наклона границы соответствие между теорией и экспериментом оказалось неожиданно хорошим. Результат для $\text{Gd}_{60}\text{Ho}_{40}$ совпадает с результатом для тербия в пределах экспериментальной точности [32].

Еще одно классическое проявление ЭТП — характерная аномалия термоэдс: это единственный легко измеряемый эффект, который при ЭТП испытывает расходимость, а не просто аномалию. Хотя, строго говоря, расходимость имеет место только при нулевой температуре, для наблюдения аномалии достаточно, чтобы температура была много меньше энергии Ферми [33], что с запасом выполняется для ТРЗМ при комнатной температуре.

Мы исследовали зависимость термоэдс от давления в том же монокристалле тербия при растяжении и сжатии вдоль гексагональной оси при комнатной температуре, т.е. значительно выше температуры магнитного упорядочения, где магнитные эффекты заведомо пренебрежимо малы и термоэдс зависит только от спектра электронов проводимости. Зависимость коэффициента Зеебека Q от давления приведена на рис. 6. Ход зависимости соответствует ожидаемому для ЭТП при ненулевой температуре [31] (пунктир). Упругая деформация u в пределах всего лишь $\pm 2 \cdot 10^{-3}$ приводит к изменению Q более чем на 15%, и безразмерная произ-

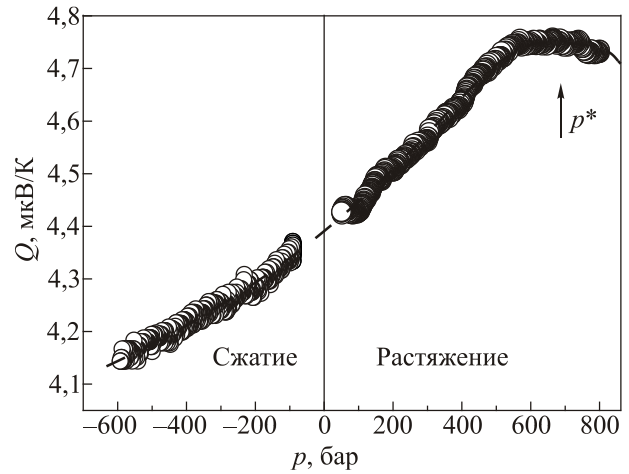


Рис. 6. Зависимость коэффициента термоэдс тербия от давления под одноосным растяжением/сжатием вдоль гексагональной оси. Давление p^* , определенное из магнитных измерений, соответствует ЭТП. Пунктир проведен согласно [33].

водная $(dQ/du)/Q$ достигает значения 50. Такое высокое значение является веским аргументом в пользу ЭТП.

Таким образом, эксперименты как качественно, так и количественно подтвердили ведущую роль ПФ в формировании магнитных структур в ТРЗМ и, соответственно, возможность ЭТП Лифшица, непосредственно отражающегося на типе магнитного упорядочения в этих металлах. Продемонстрирована возможность управления типом магнитного упорядочения в ТРЗМ путем изменения формы ПФ при упругой деформации. Результаты экспериментов находятся в хорошем согласии с расчетами из первых принципов.

Автор глубоко благодарен за сотрудничество О.А. Савельевой, Е. Bauer, J. Staunton, О.Д. Чистякову, И.В. Телегиной и за обсуждения — Р.З. Левитину и М.И. Каганову.

Работа поддержана грантом РФФИ 12-02-01227-а.

1. I.M. Lifshitz, *Sov. Phys. JETP* **11**, 1130 (1960).
2. Yu.P. Gaidukov, N.P. Danilova, and M.B. Shcherbina-Samoilova, *Sov. Phys. JETP* **50**, 1018 (1979).
3. N.B. Brandt, V.S. Egorov, M.Yu. Lavrenyuk, N.Ya. Minina, and A.M. Savin, *Sov. Phys. JETP* **62**, 1303 (1985).
4. D.R. Overcash, Davis Tracy, J.W. Cook, Jr., and M.J. Skove, *Phys. Rev. Lett.* **46**, 287 (1981).
5. Yu.P. Gaidukov, N.P. Danilova and M.B. Shcherbina-Samoilova, *JETP Lett.* **25**, 479 (1977).
6. S.L. Bud'ko, A.N. Voronovskii, A.G. Gapotchenko, and E.S. Itskevich, *Sov. Phys. JETP* **59**, 454 (1984).
7. C.L. Watlington, J.W. Cook, Jr., and M.J. Skove, *Phys. Rev. B* **15**, 1370 (1977).
8. J.E. Schirber and J.P. Van Dyke, *Phys. Rev. Lett.* **26**, 246 (1971).

9. I.Ya. Volynskii, V.I. Makarov, and V.V. Gann, *Sov. Phys. JETP* **42**, 518 (1975).
10. C.W. Chu, T.F. Smith, and W.E. Gardner, *Phys. Rev. B* **1**, 214 (1970).
11. A.N. Velikodnyi, N.V. Zavaritskii, T.A. Ignat'eva, and A.A. Yurgens, *JETP Lett.* **43**, 773 (1986).
12. V.S. Egorov and A.N. Fedorov, *Sov. Phys. JETP* **58**, 959 (1983).
13. S.V. Varyukhin and V.S. Egorov, *JETP Lett.* **39**, 621 (1984).
14. J. Jensen and A.R. Mackintosh, *Rare Earth Magnetism*, Clarendon Press, Oxford (1991).
15. M.K. Wilkinson, W.C. Koehler, E.O. Wollan, and J.W. Cable, *J. Appl. Phys.* **32**, S48 (1961).
16. W.C. Koehler, H.R. Child, E.O. Wollan, and J.W. Cable, *J. Appl. Phys.* **34**, 1335 (1963).
17. W.M. Lomer, *Proc. Phys. Soc.* **80**, 489 (1962).
18. I.E. Dzyaloshinski, *Sov. Phys. JETP* **20**, 223 (1965).
19. S.C. Keeton and T.L. Loucks, *Phys. Rev.* **168**, 672 (1968).
20. R. Ahuja, S. Auluck, B. Johansson, and M.S.S. Brooks, *Phys. Rev. B* **50**, 5147 (1994).
21. L. Nordstrom and A. Mavromaras, *Europhys. Lett.* **49**, 775 (2000).
22. I.D. Hughes, M. Dane, A. Ernst, W. Hergert, M. Luders, J. Poulter, J.B. Staunton, A. Svane, Z. Szotek, and W.M. Temmerman, *Nature* **446**, 650 (2007).
23. H.M. Fretwell, S.B. Dugdale, M.A. Alam, D.C.R. Hedley, A. Rodriguez-Gonzalez, and S.B. Palmer, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3867 (1999).
24. K.M. Dobrich, A. Bostwick, E. Rotenberg, and G. Kaindl, *Phys. Rev. B* **81**, 012401 (2010).
25. K.M. Dobrich, A. Bostwick, J.L. McChesney, K. Rossmagel, E. Rotenberg, and G. Kaindl, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 246401 (2010)].
26. A. Andrianov, *JETP Lett.* **55**, 666 (1992).
27. К.П. Белов, М.А. Белянчикова, Р.З. Левитин, С.А. Никитин, *Редкоземельные ферро- и антиферромагнетики*, Наука, Москва (1965).
28. A.VI. Andrianov, D.I. Kosarev, and A.I. Beskrovnyi, *Phys. Rev. B* **62**, 13844 (2000).
29. A.VI. Andrianov and O.D. Chistiakov, *Phys. Rev. B* **55**, 14107 (1997).
30. A.VI. Andrianov, O.A. Savel'eva, E. Bauer, and Ch. Paul, *Phys. Rev. B* **72**, 132408 (2005).
31. A.VI. Andrianov, E. Bauer, Ch. Paul, and O.A. Savel'eva, *J. Magn. Magn. Mater.* **272–276**, Supplement, E451 (2004).
32. A.VI. Andrianov, O.A. Savel'eva, E. Bauer, and J.B. Staunton, *Phys. Rev. B* **84**, 132401 (2011).
33. Ya.M. Blanter, M.I. Kaganov, A.V. Pantsulaia, and A.A. Varlamov, *Phys. Rep.* **245**, 159 (1994).

Electron topological Lifshitz transition and complex magnetic structures in heavy rare-earth metals

A.VI. Andrianov

The determining role of geometry of Fermi surface in the formation of long-period magnetic structures in heavy rare-earth metals is considered. It is shown that each of these metals is on the verge of electron topological Lifshitz transition. It is experimentally supported that the electron topological transition due to elastic deformation results in changes of magnetic ordering types. A universal phase diagram “magnetic ordering type — parameters a and c of hcp lattice” is determined for the above metals, it being in good agreement with the first-principle calculated results.

PACS: **71.18.+y** Fermi surface: calculations and measurements; effective mass, g -factor;
71.20.Eh Rare-earth metals and alloys;
75.30.Kz Magnetic phase boundaries (including classical and quantum magnetic transitions, metamagnetism, etc.).

Keywords: Fermi surface, magnetic phase transitions, electronic structure of metals, rare-earth metals, compound magnetic structures.