

Эффект де Гааза–ван Альфена в зонном антиферромагнетике FeGe₂: проявление спиновых расщеплений

Г.Е. Гречнев, А.А. Лёгенькая, В.Б. Плужников, И.В. Свечкарев, А.В. Федорченко

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: grechnev@ilt.kharkov.ua*

J.M. Perz

Department of Physics, University of Toronto, 60 George Str., Toronto M5S1A7, Canada

Статья поступила в редакцию 26 декабря 2013 г.

Проведены экспериментальные исследования эффекта де Гааза–ван Альфена (дГВА) в антиферромагнитном соединении FeGe₂. Обнаружено резкое подавление амплитуды основной гармоники осцилляций дГВА для ряда орбит на поверхности Ферми FeGe₂. Установлено изменение условий подавления амплитуды («спиновых нулей») при допировании FeGe₂ кобальтом. Для анализа экспериментальных данных предложен метод вычисления g -факторов электронов проводимости на основе расчетов спин-поляризованной электронной структуры зонного антиферромагнетика с учетом спин-орбитального взаимодействия, а также проведен расчет фактора обменного усиления спинового парамагнетизма в FeGe₂.

Проведено експериментальні дослідження ефекту де Гааза–ван Альфена (дГВА) в антиферомагнітній сполуці FeGe₂. Виявлено різке пригнічення амплітуди основної гармоніки осциляцій дГВА для ряду орбіт на поверхні Фермі FeGe₂. Встановлено зміну умов пригнічення амплітуди («спінових нулів») при допюванні FeGe₂ кобальтом. Для аналізу експериментальних даних запропоновано метод обчислення g -факторів електронів провідності на основі розрахунків спин-поляризованої електронної структури зонного антиферомагнетика з урахуванням спин-орбітальної взаємодії, а також проведено розрахунок фактора обмінного посилення спинового парамагнетизму в FeGe₂.

PACS: **71.18.+y** Поверхность Ферми; расчеты и измерения, эффективная масса, g -фактор;
71.15.Mb Теория функционала плотности, приближение локальной плотности, градиент и другие поправки;
71.20.Lp Интерметаллические соединения;
75.50.-y Изучение конкретных магнитных материалов.

Ключевые слова: FeGe₂, эффект дГВА, g -фактор, зонный антиферромагнетик.

Обнаружение сверхпроводимости в ряде слоистых соединений железа с элементами sp -типа (As, Se, Te), в которых реализуется и антиферромагнитное (АФМ) упорядочение, привлекает внимание к исследованию природы и параметров электронных взаимодействий в таких системах (не обязательно сверхпроводящих) на микроскопическом уровне. Представитель этого класса соединений — дигерманид железа FeGe₂. Соединение FeGe₂ имеет тетрагональную структуру с чередованием слоев железа и германия и в основном состоянии представляет собой антиферромагнетик, в котором

магнитный порядок обеспечивается электронами проводимости. Химическая и магнитная решетки дигерманида железа совпадают [1], что облегчает теоретический анализ его электронных свойств.

Мощным методом исследований природы электронных состояний на поверхности Ферми (ПФ) является эффект де Гааза–ван Альфена (дГВА), из которого помимо площадей экстремальных сечений ПФ могут быть извлечены характеристики взаимодействий носителей заряда на экстремальных траекториях [2–4]. Эффект дГВА в FeGe₂ впервые наблюдали в работе [5].

В работах [6–8] были проведены расчеты электронного спектра для парамагнитной и магнитоупорядоченных фаз FeGe₂. Согласно результатам этих расчетов, минимальная полная энергия FeGe₂ соответствует коллинеарной АФМ структуре с чередующимися ферромагнитными слоями (100) моментов железа с $m = 1,24 \mu_B$, в согласии с данными нейтронографических исследований [1]. В результате этих исследований установлено существование листа дырочной ПФ, подобного октаэдру, слегка вытянутому вдоль тетрагональной оси. Именно этот лист ПФ, центрированный в точке Г зоны Бриллюэна, и ответственен за квантовые осцилляции намагниченности в FeGe₂, исследованные в настоящей работе.

Исследования эффекта дГВА проводили на монокристаллах FeGe₂, а также на образце FeGe₂, легированном кобальтом (1000 ppm Co), при минимальной температуре 1,7 К и в магнитных полях до 8 Тл. При направлении магнитного поля вблизи оси [001] (т.е. для экстремальных траекторий вблизи базисной плоскости октаэдра) было обнаружено резкое подавление амплитуды основной гармоники осцилляций, обязанное наличию спинового расщепления уровней Ландау и особого соотношения величин спинового и орбитального расщеплений. Экспериментальное и теоретическое исследования спиновых расщеплений в электронном спектре предоставляют принципиальную возможность получить важную информацию о взаимодействии электронов проводимости [4].

Согласно теории Лифшица–Косевича [2,3], в результате наложения осцилляций от электронов с двумя направлениями спина результирующая амплитуда основной гармоники осцилляций в эффекте дГВА пропорциональна спиновому множителю:

$$M \sim \cos[(\pi/2)g_c m_c/m_0], \quad (1)$$

где m_c — циклотронная масса для данной орбиты на ПФ, m_0 — масса свободного электрона, а g_c — орбитальный g -фактор. Условия подавления амплитуды (так называемого «спинового нуля» — spin-splitting zero (SSZ)) следует из (1):

$$g_c m_c/m_0 = 1, 3, \dots \quad (2)$$

Обнаружение SSZ при определенном направлении магнитного поля позволяет сразу найти величину эффективного g -фактора на соответствующей орбите по известному из эксперимента значению циклотронной массы электрона (дырки), не прибегая к более трудоемкому, менее точному и не всегда однозначному анализу амплитуд. Следует отметить, что определяемые из дГВА экспериментов g -факторы перенормированы многочастичным обменным взаимодействием [4]: $g_c = Sg_b$, где g_b — «зонные» g -факторы, которые можно определить на основе расчетов зонной структуры, а S — фактор усиления Стонера.

Значения циклотронных эффективных масс «октаэдра» в FeGe₂ для направления поля вдоль основных кристаллографических осей составляют [7]: m_c/m_0 [001] = 0,51, m_c/m_0 [100] = m_c/m_0 [110] = 0,40, и при значениях g -фактора, близких к $g_0 = 2$ для свободных электронов, действительно благоприятны для реализации условия SSZ, согласно (2) ($g_c m_c/m_0 = 1$), при отклонении поля от оси [001] на некоторый угол θ . Поскольку орбитальные g -факторы могут заметно отличаться от g_0 вследствие обменного усиления и иметь значительную анизотропию, вызванную спин-орбитальным взаимодействием [4], в настоящей работе предпринят поиск возможных проявлений SSZ в FeGe₂ при различных направлениях магнитного поля.

Глубокие провалы амплитуды типа SSZ были также обнаружены и в окрестностях оси [100] (рис. 1). Основная особенность наблюдаемых спиновых нулей в FeGe₂ (как чистом соединении, так и легированном кобальтом) — зависимость их положения от величины магнитного поля (см. рис. 1). Кроме того, амплитуда осцилляций непосредственно в точках SSZ падает не строго до нуля, а остается хотя и малой, но конечной. В частности, этой амплитуды достаточно для определения эффективных масс непосредственно в SSZ (сохраним это обозначение и для «неполных» спиновых нулей) вокруг оси [100]. В пределах погрешности они совпадают с найденным значением m/m_0 [100] = 0,40. На рис. 2 приведены стереографические проекции контуров SSZ₁₀₀ вокруг оси [100] при различных значениях магнитного поля для чистого FeGe₂ и FeGe₂+1000 ppm Co. Представлены только надежно разрешенные минимумы амплитуды, для которых на этапе выявления SSZ не надо прибегать к детальному анализу эффектов рассеяния [4].

Контур SSZ₁₀₀ вытянут в направлении [001] и расширяется с ростом поля по крайней мере в этом направлении в чистом FeGe₂ и почти изотропно в

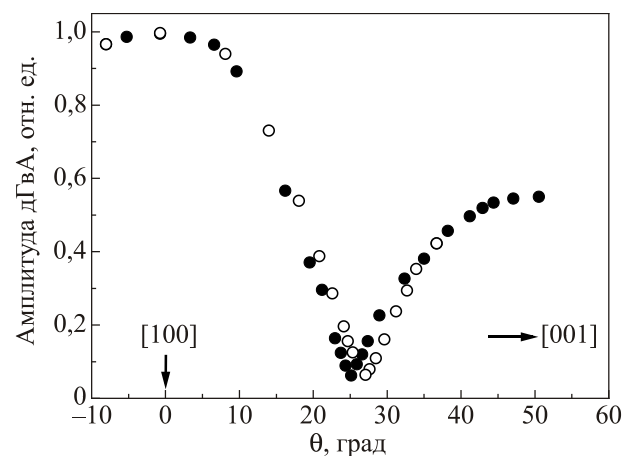


Рис. 1. Угловая зависимость амплитуды осцилляций магнитного момента FeGe₂ в окрестности «спиновых нулей» SSZ₁₀₀ при различных значениях магнитного поля H , Тл: 4 (●), 6,5 (○).

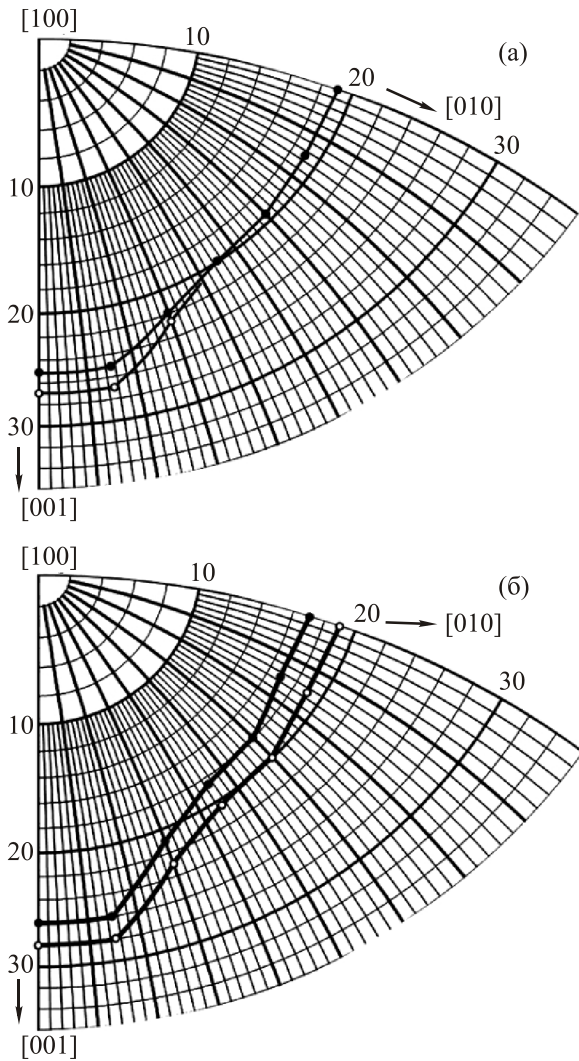


Рис. 2. Стереографическая проекция контуров SSZ_{100} для образцов: $FeGe_2$ (а) и $FeGe_2+1000$ ppm Co (б) при различных полях H , Тл: 4 (●), 6,5 (○) (а); 3,5 (●), 6,5 (○) (б).

$Fe(Co)Ge_2$. Смещения контуров с ростом поля невелики и составляют в рабочем диапазоне около 2° (рис. 2), что не позволяет установить функциональную связь между величиной поля и угловым смещением SSZ_{100} . Введенная примесь Co слабо повлияла на положение контура спиновых нулей относительно оси [100] и его полевою зависимость (во всяком случае, в плоскости (100)).

Влияние поля и примеси Co на контур SSZ_{001} вокруг тетрагональной оси значительно сильнее, здесь эти факторы сближают контур с осью [001]. Связь между величиной поля $H_{SSZ}(\theta)$ и углом θ между направлением поля и осью [001] в плоскости (110) хорошо аппроксимируется эмпирическим соотношением

$$H_{SSZ}(0) - H_{SSZ}(\theta) = k(1 - \cos \theta), \quad (3)$$

с практически совпадающей правой частью для $FeGe_2$ и сплава. Значения поля $H_{SSZ}(0)$, при котором контур

SSZ_{001} должен стянуться в точку на оси [001] (9,8 Тл в $FeGe_2$, 7,9 Тл в сплаве), и коэффициент $k = 138$ Тл получены путем подгонки уравнения (3) к экспериментальным данным. Степень их согласия демонстрирует рис. 3. Введение 1000 ppm примеси Co снижает поле H_{SSZ} примерно на 2 Тл, не меняя его угловую зависимость. Отсюда следует, что эта зависимость присуща именно матрице $FeGe_2$, а не вызвана отклонениями от стехиометрии или какими-либо другими дефектами структуры. При линейной экстраполяции достаточно 4000 ppm Co для вывода SSZ_{001} из зоны наблюдения.

Проявление полевой зависимости SSZ обусловлено главным образом рассинхронизацией спиновых и орбитального расщеплений уровней в поле. Это может быть вызвано воздействием не зависящей от поля добавки к спиновому расщеплению вследствие обменного взаимодействия зонных электронов с локализованными моментами примесных атомов (в частности, в Кондо системах [4]) или с упорядоченными магнитными моментами в зонных антиферромагнетиках [9]. При этом зависимость характера рассеяния электронов от ориентации спина приводит к различию их вкладов в амплитуду осцилляций и ее неполному подавлению в «спиновых нулях».

В случае доминирующего обмена с примесными моментами условие реализации SSZ зависит от поля и выражение (2) модифицируется следующим образом [4]:

$$(g_c - H_{ex}/H)m_c/m_0 = 1, 3, \dots \quad (4)$$

Здесь предполагается антиферромагнитный обмен, и H_{ex} — параметр обменного расщепления уровней, пропорциональный концентрации магнитной примеси и обменному интегралу.

Рассмотрение условий SSZ для зонного антиферромагнетика с совпадающими периодами магнитной и химической решеток проведено в [9] с использованием теории возмущений для учета влияния кулоновского и обменного потенциалов. Результаты, выраженные через зонные характеристики, предсказывают наличие полевой зависимости SSZ. Проведение численных расчетов для $FeGe_2$ на основе теории [9] представляется, однако, нецелесообразным из-за несоответствия заложенной в ее основу упрощенной модели спектра реальному соединению переходного d -металла.

Простота октаэдрической ПФ $FeGe_2$ на самом деле иллюзорна. Это видно уже из несоответствия анизотропии сечений поверхности и эффективных масс: большие массы наблюдаются на тонкой «тали». Согласно проведенным расчетам спектра $E(k)$, для ПФ $FeGe_2$ характерна сильная гибридизация d -состояний железа с p -состояниями германия. Это подтверждается найденной из расчетов [7] высокой чувствительностью формы и размеров октаэдрической поверхности и величины эффективных масс к типу АФМ упорядочения. Заметим, что не всякий лист поверхности Ферми при-

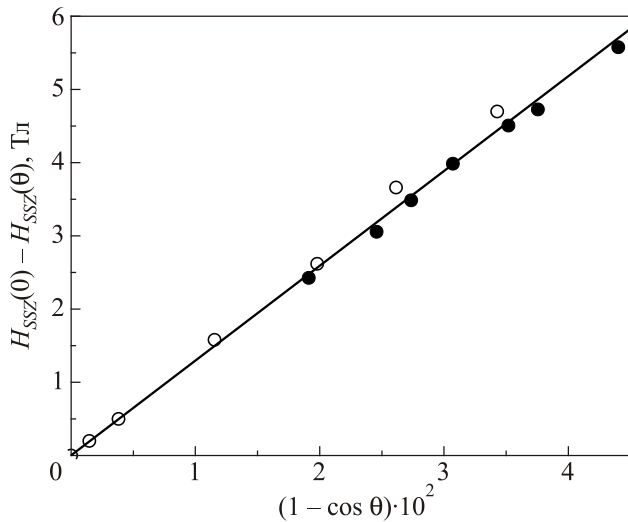


Рис. 3. Аппроксимация экспериментальных угловых зависимостей $H_{SSZ}(0) - H_{SSZ}(\theta)$: FeGe₂ (●), FeGe₂+1000 ppm Co (○) соотношением (3) в окрестности оси [001].

годен для тестирования магнитной структуры. Недавние исследования эффекта дГВА в антиферромагнитном соединении CrB₂ показали [10], что наблюдаемая в нем ПФ порождена p -состояниями бора и вообще не зависит от наличия магнитного порядка.

Обнаруженные в данной работе «спиновые нули» в эффекте дГВА в FeGe₂ дают возможность определить соответствующие орбитальные g -факторы электронов проводимости, зависящие от особенностей проявления спин-орбитального, электрон-электронного, а также обменного взаимодействия в АФМ FeGe₂. Измерение и теоретический анализ g -факторов в принципе позволяют извлечь важную информацию об особенностях электронной структуры и многочастичных взаимодействий на ПФ. Однако методы расчета g -факторов в металлах остаются одними из наименее разработанных в зонной теории, в особенности для зонных АФМ систем.

В работе [11] предложен оригинальный метод самосогласованного расчета спин-поляризованной электронной структуры металлических систем во внешнем магнитном поле в рамках теории функционала плотности (DFT) и формализма linear muffin-tin orbital (LMTO) с полным потенциалом [12] путем включения в гамильтониан оператора Зеемана, $\mu_B H(2\hat{S} + \hat{L})$, где \hat{S} — оператор спина и \hat{L} — оператор орбитального углового момента. Вычисленные в настоящей работе во внешнем поле 10 Тл индуцированные спиновый и орбитальный магнитные моменты позволили получить соответствующие компоненты тензора магнитной восприимчивости χ в АФМ фазе FeGe₂. Орбитальный вклад Ван Флека в χ оказался существенным (около 40% полной парамагнитной восприимчивости), тогда как обменное усиление спинового парамагнетизма (ко-

торое проявляется в g -факторах посредством параметра Стонера S) оказалось относительно небольшим и составило $S = 1,7$. Это объясняется расположением уровня Ферми в окрестности глубокого минимума плотности состояний, что согласуется с частичной «диэлектризацией» спектра вследствие появления АФМ «щелей» для ряда направлений зоны Бриллюэна [7].

В согласии с зонной теорией спин-поляризованных электронных спектров, в магнитном поле H спиновое вырождение электронных состояний в зоне проводимости снимается и каждый уровень расщепляется на два с энергиями, равными

$$E_n(\mathbf{k})^+ - E_n(\mathbf{k})^- = g_n^\alpha(\mathbf{k})\mu_B H, \quad (5)$$

где n — номер энергетической зоны, α — направление магнитного поля. Таким образом, согласно (5), путем непосредственного вычисления расщеплений энергетических уровней в магнитном поле в рамках формализма [11,12] можно рассчитать анизотропные g -факторы на ПФ АФМ FeGe₂. При этом эффекты спин-орбитального, электрон-электронного и АФМ обменного взаимодействий будут учтены в рамках единого самосогласованного DFT расчета спектра из первых принципов. Детальные расчеты орбитальных g -факторов на ПФ АФМ FeGe₂ и соответствующий анализ поведения полученных в дГВА эксперименте «спиновых нулей» составляют предмет отдельного исследования и выходят за рамки настоящей работы. Представленные в работе экспериментальные данные дают возможность использовать для сопоставления достаточно широкий набор экстремальных орбит с фиксированным соотношением спиновых и орбитальных расщеплений энергетических уровней, включая и те, которым соответствует движение носителей заряда в кристаллических слоях одинаковой химической природы.

Авторы благодарны А.А. Фролову за предоставленные образцы, А.В. Оболянинову за участие в экспериментах.

1. L.M. Corliss, J.M. Hastings, W. Kunmann, R. Butera, and D. Mukamel, *Phys. Rev. B* **31**, 4337 (1985).
2. И.М. Лифшиц, А.М. Косевич, *ДАН СССР* **XCVI**, №5 (1954).
3. И.М. Лифшиц, А.М. Косевич, *ЖЭТФ* **29**, 730 (1955).
4. Д. Шенберг, *Магнитные осцилляции в металлах*, Мир, Москва (1986).
5. B.I. Verkin, V.B. Pluzhnikov, I.V. Svechkarev, Yu.N. Fomenko, P.V. Gel'd, and R.P. Krentsis, *Inst. Phys. Conf. Ser.* **39**, 617 (1978).
6. H.I. Skriver, G.E. Grechnev, V.O. Kruglov, and I.V. Svechkarev, *Fiz. Nizk. Temp.* **13**, 438 (1987) [*Sov. J. Low. Temp. Phys.* **13**, 250 (1987)].
7. G.E. Grechnev, J. Kübler, and I.V. Svechkarev, *J. Phys.: Condens. Matter* **3**, 7199 (1991).

8. A. Bekhti-Siad, A. Mokrani, C. Demangeat, and A. Khelil, *J. Mol. Struct.: THEOCHEM* **777**, 11 (2006).
9. D.S. Montgomery, *Solid State Commun.* **34**, 571 (1980).
10. M. Brasse L. Chioncel, J. Kunes, A. Bauer, A. Regnat, C.G.F. Blum, S. Wurmehl, C. Pfleiderer, M.A. Wilde, and D. Grundler, *Phys. Rev. B* **88**, 155138 (2013).
11. G.E. Grechnev, *Fiz. Nizk. Temp.* **35**, 812 (2009) [*Low Temp. Phys.* **35**, 638 (2009)].
12. J.M. Wills, M. Alouani, P. Andersson, A. Delin, O. Eriksson, and A. Grechnev, *Full-Potential Electronic Structure Method. Energy and Force Calculations with Density, Functional and Dynamical Mean Field Theory*, Springer Verlag, Berlin (2010), Vol. 167.

The de Haas–van Alphen effect in the itinerant antiferromagnet FeGe₂: manifestation of spin splitting

G.E. Grechnev, A.A. Lyogenkaya, V.B. Pluzhnikov, I.V. Svechkarev, A.V. Fedorchenko, and J.M. Perz

The de Haas–van Alphen (dHvA) effect in the antiferromagnetic FeGe₂ compound is studied experimentally. A sharp suppression of amplitude for the first

harmonic of the dHvA oscillations is observed for a number of orbits on the Fermi surface of FeGe₂. It is found that the conditions of the dHvA amplitude suppression (“spin-splitting zero”) are changed for FeGe₂ doped with cobalt. To analyse the experimental data we proposed a method of comprehensive calculation of conduction electron *g*-factors in itinerant antiferromagnetic systems, which is based on the calculations of spin-polarized electronic structure, taking into account the spin-orbit interaction, and estimated the factor of exchange enhancement of spin paramagnetism in FeGe₂.

PACS: **71.18.+y** Fermi surface: calculations and measurements; effective mass, *g*-factor;
71.15.Mb Density functional theory, local density approximation, gradient and other corrections;
71.20.Lp Intermetallic compounds;
75.50.-y Studies of specific magnetic materials.

Keywords: FeGe₂, de Haas–van Alphen effect, *g*-factor, band antiferromagnetic.