

Ю.Г. СЕМЕНОВ,<sup>1</sup> С.М. РЯБЧЕНКО<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Інститут фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова НАН України  
(Просп. Науки, 41, Київ 03680)

<sup>2</sup> Інститут фізики НАН України  
(Просп. Науки, 46, Київ 03028)

## НАБЛИЖЕННЯ МОЛЕКУЛЯРНОГО ПОЛЯ В ТЕОРІЇ ФЕРОМАГНІТНОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДУ В РОЗБАВЛЕНИХ МАГНІТНИХ НАПІВПРОВІДНИКАХ

УДК 539

*У цій роботі педагогічного характеру викладено порівняльний аналіз двох загальних підходів, що описують феромагнітний фазовий перехід у розбавлених магнітних напівпровідниках (DMS), з точки зору наближення поля Вейсса. Притуплюючи скінчену спінову поляризацію домішкових магнітних іонів, ми розглядаємо обмінну взаємодію цих магнітних іонів і вільних носіїв заряду напівпровідника в першому порядку теорії збурень і отримуємо однорідне молекулярне поле Вейсса, яке поляризує спіни носіїв. У свою чергу, ця спінова поляризація вільних носіїв створює ефективно поле, яке може стабілізувати спінову поляризацію DMS нижче критичної температури  $T_C$ . Трактуювання такої самоузгодженої спонтанної намагніченості DMS може здійснюватися з точки зору спін-спінової взаємодії між магнітними іонами, незалежною від відстані між ними і нескінченно малою в термодинамічній границі. З іншого боку, врахування додатково ефектів обмінної взаємодії магнітних іонів і вільних носіїв заряду у другому порядку теорії збурень описує поле Вейсса в термінах непрямої спін-спінової взаємодії Рудермана-Кіттеля-Касуя-Йосиди, яка осцилює і не зникає при скінченних міжіонних відстанях при скінченній концентрації носіїв. Обидва підходи приводять до однакової температури Кюрі  $T_C$  у випадку некорельованого однорідного випадкового розподілу локалізованих спінових моментів по об'єму зразка. Ми обговорюємо походження такого збігу та показуємо, коли це не так у інших більш реалістичних моделях DMS зі скінченною електропровідністю (концентрацією носіїв струму).*

*Ключові слова:* розбавлені магнітні напівпровідники, феромагнітне впорядкування, наближення середнього поля, РККІ взаємодія.

### 1. Вступ

Носієво-іонна обмінна взаємодія (СІЕІ) зумовила низку незвичних електронних явищ у розбавлених магнітних напівпровідниках (DMS), таких як сполуки  $A_{1-x}Mn_xB$ , де АВ позначає напівпровідники II–VI або III–V груп [1, 2]. Незабаром після виявлення гігантського спінового розщеплення екситонних спектрів у піонерському дослідженні [1] було передбачено феромагнітний (FM) фа-

зовий перехід, що супроводжується взаємною спіновою поляризацією зонних носіїв та локалізованих спінових моментів (LSM) домішкових магнітних іонів в DMS [3]. Ця стаття [3] показала, як перетворити СІЕІ спін-поляризованих LSM у молекулярне поле Вейсса, яке поляризує спіни вільних носіїв (електронів і/або дірок) у напівпровіднику. Вони, в свою чергу, стають джерелом обмінного поля, здатного стабілізувати скінченний магнітний момент LSM при певній температурі  $T_C$ . Підхід роботи [3] передбачає FM фазовий перехід з одно-

© Ю.Г. СЕМЕНОВ, С.М. РЯБЧЕНКО, 2021

ISSN 0372-400X. Укр. фіз. журн. 2021. Т. 66, № 6

503

часним виникненням спонтанного намагнічування для підсистем як LSM, так і носіїв (тобто електронів та/або дірок). Їх взаємні напрямки спінової поляризації залежать від знака СІЕІ, який зазвичай відрізняється для електронів і дірок.

Подібно до робіт [4, 5], де моделювання ферромагнетизму, спричиненого носіями, за допомогою СІЕІ було вперше використано для опису ферромагнетизму перехідних металів, формалізм роботи [3] передбачає додатковий ефект іон-іонної спін-спінової взаємодії з обмінними константами  $J_{mm}(\mathbf{R}_{j1}, \mathbf{R}_{j2})$ , де  $\mathbf{R}_{j1}, \mathbf{R}_{j2}$  є радіуси-вектори місць локалізації відповідних магнітних іонів. У посиланні [3] було висловлено припущення, що ефективна непряма взаємодія іонно-іонного обміну РККУ [6–8] через носії може бути додана до внесків  $J_{mm}(\mathbf{R}_{j1}, \mathbf{R}_{j2})$ . Це не зовсім вірне припущення не супроводжувалось більш ретельним теоретичним аналізом робіт [8, 9], а також обговоренням, представленим в іншій частині статті. Більше того, всі оцінки в [3] проводились у межах  $J_{mm} \rightarrow 0$ . Отже, підхід роботи [3] дозволяє правильно оцінити діапазон температури Кюрі  $T_C$  для справжніх магніто-легованих напівпровідників лише у межах першого порядку наближення збурень зонних станів носіїв струму СІЕІ взаємодією.

Формалізм, що склався в обох посиланнях. [4, 5] та [3], розглядає СІЕІ у першому порядку теорії збурень, який оцінює лише поправки на енергію взаємодіючих частинок, хоча не враховує ефекти розсіювання електронів (дірок) із зміною їх хвильових векторів. Ось чому ряд авторів використовують лексику “безпосередня іоно-носієва обмінна взаємодія” для позначення СІЕІ у першому порядку збурень. При цьому підході поле Вейсса, породжене одним LSM, впливає на спіни інших іонів через вільні носії незалежно від відстані між цим та іншими іонами. Свого часу ця обставина викликала жваву наукову дискусію (див. [8] та [9]). Згадаймо також, що описаний вище формалізм не передбачає модифікації взаємодії обміну LSM-LSM через СІЕІ.

Альтернативний підхід до цієї проблеми розглядає вільні носії як посередника опосередкованої взаємодії між парами локалізованих спінів. Така взаємодія, як правило, посилюється на непряму спін-спінову взаємодію Рудермана–Кіттеля–Касуя–Йосиди (РККУ) [6–8]. Стандартна процедура передбачає оцінку енергії цієї непрямої вза-

ємодії через другий порядок теорії збурень, який змішує електронні стани з різними хвильовими векторами  $\mathbf{k} \neq \mathbf{k}'$ , але виключає випадок  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$ . Відповідно, спін-залежна корекція енергії другого порядку осцилює зі зміною відстані між місцями розташування спінів. Однак зазначимо, що фактична процедура РККУ також неявно передбачає внесок особливих точок  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$  розсіювання без зміни хвильового вектора. Було показано, що цей внесок збігається з ефектами першого порядку носій-іонної взаємодії [8, 9]. Таким чином, непряма спін-спінова взаємодія РККУ може призвести до FM-кореляцій та фазового переходу, розрахованих з точки зору першого та другого порядків теорії збурень спільно.

Фазові переходи FM у DMS вперше спостерігались у сполуках IV–Mn–VI [10] і пояснювались у термінах взаємодії РККУ. Дивно, що молекулярне поле Вейсса, розраховане з точки зору збурень першого порядку [3] та з точки зору суми спін-спінових взаємодій РККУ, призводить до однакового виразу в разі випадкового некорельованого розподілу магнітних іонів. Виходячи з цього твердження, тотожність обох підходів стала загальноприйнятою думкою [11]. Іншими словами, температура Кюрі, оцінена у першому порядку СІЕІ, припускає, що не буде уточненою з додаванням ефектів другого порядку взаємодії РККУ. Це також означає, що ефект другого порядку, представлений сумою по електронах/дірках розсіювання з  $\mathbf{k} \neq \mathbf{k}'$ , не додає внеску до енергії спінів у полі Вейсса при випадковому некорельованому розподілі магнітних іонів.

Тим не менше, на відміну від загальної точки зору, перевірка цього припущення для точно розв'язаної моделі плоских енергетичних зон виявляє додаткові внески взаємодії “прямої” (1-й порядок) та “непрямої” (2-го порядку) у вираз критичної температури фазового переходу FM [12]. Інтрига цієї антиномії була посилена роботами [13, 14], які продемонстрували значну невідповідність середнього поля [3] та трактові РККУ в більш просунутому наближенні випадкових полів. Отже, проблема того, як наближення зонної структури більш реалістичні, ніж бездисперсійне [12], можуть модифікувати молекулярне поле Вейсса, як і раніше залишається актуальною проблемою теорії фазового переходу FM у неупорядкованих магнітних системах. Нижче ми представляємо аналіз цієї пробле-

ми з точки зору ефективних полів, опосередкованих CIEI в першому та другому порядку окремо. Зокрема, ми показуємо, що корекція другого порядку до поля Вейсса стає нульовою лише за умови некорельованого рівномірного розподілу LSM аж до нескінченно малих міжіонних відстаней. Більше того, на відміну від моделювання розподілу LSM наближенням вільного газу, навіть обмеження мінімальної міжіонної відстані константою ґратки таке, що не усунути, може помітно коригувати оцінку критичної температури в DMS.

Зауважимо, що гігантське спінове розщеплення електронних і екситонних зон, яке спостерігається в DMS, зазвичай описується в першому порядку по CIEI. Цей підхід не враховує осциляції густини спіну носія заряду навколо LSM у залежності від відстані до нього. З іншого боку, такі осциляції можуть бути важливими в інших явищах. Наприклад, RKKY-подібні осциляції ефективної спин-спінової взаємодії відповідають за немонотонну залежність обмінної взаємодії між FM-шарами від товщини немагнітного спейсера між ними [15–18].

## 2. Поле Вейсса у наближенні першого порядку

Для конкретності розглянемо DMS з виродженим газом вільних носіїв, електронів чи дірок у простій енергетичній зоні, з ізотропним законом дисперсії і з ефективною масою  $m^*$ . Більш того, щоб зосередитись лише на ефектах CIEI, прямі іон-іонні спин-спінові взаємодії, не пов'язані із вільними носіями, не включатимемо до розгляду. Це спрощення відповідає моделі, розробленій у посиланні [3], забезпечуючи нульове значення прямої спин-спінової взаємодії. Гамільтоніан носій-іонної обмінної взаємодії набуває форми контактної взаємодії між електронами зі спіном і радіус-векторами  $\mathbf{s}_i$ ,  $\mathbf{r}_i$  та  $N_m$  магнітними іонами зі спінами  $\mathbf{S}_j$ , розташованими в місцях ґратки з радіус-векторами  $\mathbf{R}_j$ :

$$\hat{H}_{L,e} = -\beta \sum_i \sum_j \mathbf{S}_j \mathbf{s}_i \delta(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j). \quad (1)$$

Параметр CIEI  $\beta N_0$ , де  $N_0$  – концентрація примітивних комірок (кількість примітивних комірок у зразку, розділена на його об'єм) і  $\beta$ , котра є розрахунковим параметром з розмірністю енергії, помноженої на об'єм. Величина  $\beta N_0$  досягає достатньої величини у валентних зонах більшості

DMS, до 1 eV і навіть більше [19]. Обмінний інтеграл, що впливає з (1), залежить як від типу кристала, так і від параметрів магнітних іонів. Відповідний спин-гамільтоніан походить від рівняння (1) після усереднення  $\delta(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j)$  на координатній хвильовій функції носія  $\Psi(\mathbf{r})$ . Остання являє собою стандартну функцію Блоха, нормовану на об'єм кристала  $V$ , якщо CIEI (1) не сильно деформує вихідні стани носія. Необхідна умова цього наближення відповідає малості параметра  $\varepsilon = \beta N_0 / W$ , де  $W$  – ширина відповідної зони носія [20]. У тексті нижче цей параметр вважається малим, і функції Блоха залишаються гарним наближенням нульового порядку для стану електронів/дірок в DMS. Слід зазначити, що в такому випадку інтеграл обміну для одного носія з одним LSM,  $J_{1,1}$ , буде:

$$J_{1,1} = \beta / V. \quad (1a)$$

Якщо носій локалізований у частині кристала, наприклад електрон нейтрального донора, або носій у разі утворення магнітного полярона, обмінний інтеграл одного носія з одним LSM може достатньо посилитися за рахунок зростання густини носія на LSM у зменшеному об'ємі локалізації.

Якщо нехтувати спіновими коливаннями LSM, рівняння (1) представляє зееманівську енергію електронів в однорідному полі Вейсса магнітних іонів ( $m$ ), що діють на спин носія (позначимо його як електрон ( $e$ )):

$$\mathbf{B}_{e/m} = \frac{\beta n_m \langle \mathbf{S}_m \rangle}{g_e \mu_B}, \quad (2)$$

де  $n_m$ ,  $g_e$  і  $\mu_B$  є концентрація LSM, g-фактор електрона і магнетон Бора, відповідно.

З іншого боку, CIEI (1) можна переписати як зееманівську енергію магнітних іонів, на які впливає обмінне поле електронів, із середнім значенням спінової поляризації  $\langle \mathbf{s}_e \rangle$ ,

$$\mathbf{B}_{m/e} = \frac{\beta n_e \langle \mathbf{s}_e \rangle}{g_m \mu_B}, \quad (3)$$

де  $g_m$  є g-фактор LSM, а  $n_e$  є концентрація електронів.

Рівняння (2) та (3) виглядають як повна система рівнянь щодо ефективних полів, якщо врахувати співвідношення:

$$\langle \mathbf{S}_m \rangle = -\chi_m^{(1)} \frac{\mathbf{B}_{m/e}}{g_m \mu_B} \quad (4)$$

$$\langle \mathbf{S}_e \rangle = -\chi_e^{(1)} \frac{\mathbf{B}_{e/m}}{g_e \mu_B}, \quad (5)$$

де магнітна сприйнятливість LSM  $\chi_m^{(1)}(\mathbf{B}_{m/e})$  на один LSM є функцією  $\mathbf{B}_{m/e}$  і температури  $T$ , а  $\chi_e^{(1)} = (3/8)g_e^2 \mu_B^2 / \varepsilon_F$  є сприйнятливість на один вроджений електрон з енергією Фермі  $\varepsilon_F$ .

Рівняння для критичної температури появи спонтанного намагнічування,  $T_C$ , представляє випадок нескінченно малих спонтанних обмінних полів  $\mathbf{B}_{m/e}$  і  $\mathbf{B}_{e/m}$  в рівняннях (4) та (5). Таким чином, щоб знайти  $T_C$ , слід замінити  $\chi_m^{(1)}(\mathbf{B}_{m/h})$  на сприйнятливість до нульового поля  $\chi_m^{(1)}(0)$ . У найпростішому випадку магнітних іонів, що взаємодіють лише через зонні носії, рішення відповідного рівняння набуває вигляду [12]:

$$T_C = \frac{S(S+1)}{3} \beta^2 n_m n_e \frac{\chi_e^{(1)}}{g_e^2 \mu_B^2} = \frac{S(S+1)}{8} \frac{\beta^2 n_m n_e}{\varepsilon_F}. \quad (6)$$

Тут і далі температура наводиться у енергетичних одиницях.

Це рівняння можна отримати по-різному, шляхами корисними для подальшого аналізу. Запишемо гамільтоніан для зеєманівської енергії магнітних іонів в ефективному магнітному полі вільних носіїв, що описане рівнянням (3), (наприклад, електронів провідності)  $\hat{H}_{\text{Zeem}}^{\text{eff}} = g_m \mu_B \mathbf{B}_{m/e} \sum_j \mathbf{S}_j$ . Тоді підстановка рівняння (5) у рівняння (3) перетворює цей зеєманівський гамільтоніан у

$$\hat{H}_{\text{Zeem}}^{\text{eff}} = -\beta^2 n_m n_e \frac{\chi_e^{(1)}}{g_e^2 \mu_B^2} \langle \mathbf{S}_m \rangle \sum_j \mathbf{S}_j. \quad (7)$$

Останнє рівняння чітко показує, що гамільтоніан  $\hat{H}_{\text{Zeem}}^{\text{eff}}$  – це не що інше, як наближення поля Вейсса гамільтоніану парної спін-спінової взаємодії  $N_m$  LSM, розчинених у зразку з об'ємом  $V$ :

$$\hat{H}_{SS}^{(1)} = -\frac{1}{V} \frac{\beta^2 n_e \chi_e^{(1)}}{2g_e^2 \mu_B^2} \sum_{j,j' (j \neq j')} \mathbf{S}_j \mathbf{S}_{j'}. \quad (8)$$

Ці рівняння визначають вейссівське (або молекулярне) поле:

$$\mathbf{B}_W^{(1)} = -\beta^2 \frac{n_m n_e}{g_m \mu_B} \frac{\chi_e^{(1)}}{g_e^2 \mu_B^2} \langle \mathbf{S}_m \rangle, \quad (9)$$

що однаково діє на кожен LSM. Верхній індекс “(1)” у лівій частині рівнянь (8) та (9) вказує, що

ці величини справедливі у першому порядку теорії збурень на незбурених власних функціях носія (електрона). Коефіцієнт  $1/2$  в рівнянні (8) відбиває той факт, що кожна пара спінів у сумі по  $j$  і  $j'$  враховується двічі.

Буде повчально показати ще одне виведення рівняння (8). Воно походить від визначення однорідного середнього поля, індукованого ансамблем LSM через оператор  $\hat{\mathbf{B}}_{e/m} = \frac{\beta}{g_e \mu_B} \frac{1}{V} \sum_j \mathbf{S}_j$ . Це поле понижує магнітну енергію вільних носіїв у стандартній формі:

$$\hat{H}_{SS}^{(1)} = -\frac{1}{2} V \chi_{\text{Pauli}} \hat{\mathbf{B}}_{e/m}^2, \quad (10)$$

що є просто рівняння (8) за умови, що сприйнятливість Паулі електронного (носієвого) газу є  $\chi_{\text{Pauli}} = n_e \chi_e^{(1)}$ .

Рівняння (10) встановлює ефективну спін-спінову взаємодію, незалежну від міжіонної відстані. Більше того, вона стає нескінченно малою у термодинамічному ліміті  $V \rightarrow \infty$  для будь-якої пари спінів LSM, але зберігає скінченне значення поля Вейсса в термодинамічному ліміті  $N_m \rightarrow \infty$  при  $n_m = \text{const}$ , як вже згадувалося вище. Цей результат виникає в першому порядку теорії збурень, яка трактує СІЕІ (1) з точки зору незмінених взаємодією хвильових функцій вільних носіїв заряду. Тим не менш, скінчена критична температура (6) впливає з наближення поля Вейсса рівнянням (8) за умови, що скінчена концентрація LSM є  $n_m = N_m/V$ .

### 3. РККІ взаємодія

Альтернативний підхід до FM фазового переходу впливає з перетворення СІЕІ на непряму спін-спінову взаємодію між LSM, опосередковану вільними носіями в теорії збурень другого порядку:

$$\hat{H}_{SS}^{(2)} = \frac{\beta^2}{V^2} \sum_{\sigma, \sigma'} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'=(\mathbf{k}' \neq \mathbf{k})} \frac{f(\varepsilon_{\mathbf{k}})(1-f(\varepsilon_{\mathbf{k}'}))}{\varepsilon_{\mathbf{k}} - \varepsilon'_{\mathbf{k}}} \times \\ \times \sum_{j,j' (\neq j)} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}') \cdot (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_{j'})} (\sigma | \mathbf{S}_j \mathbf{s}_e | \sigma') (\sigma' | \mathbf{S}_{j'} \mathbf{s}_e | \sigma), \quad (11)$$

де  $f(\varepsilon_{\mathbf{k}})$  – функція розподілу Фермі–Дірака, а нормуючий коефіцієнт  $V^{-2}$  з'являється з розрахунку матричного елемента з функціями Блоха зонних електронів у згаданому вигляді.

Беручи до уваги ідентичність шпурів (слідів матриць) за змінною спіну  $\sigma$ ,  $\text{Tr}_{\sigma}(\mathbf{S}_j \mathbf{s}_e)(\mathbf{S}_{j'} \mathbf{s}_e) =$

$= 1/2\mathbf{S}_j\mathbf{S}_{j'}$ , та переставляючи  $\mathbf{k}$  та  $\mathbf{k}'$  в рівнянні (11), можна отримати:

$$\hat{H}_{SS}^{(2)} = \frac{\beta^2}{4V^2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'=(\mathbf{k}' \neq \mathbf{k})} \frac{f(\varepsilon_{\mathbf{k}}) - f(\varepsilon_{\mathbf{k}'})}{\varepsilon_{\mathbf{k}} - \varepsilon_{\mathbf{k}'}} \times \sum_{j, j'(\neq j)} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')(\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_{j'})} \mathbf{S}_j \mathbf{S}_{j'}. \quad (12)$$

Процедура теорії збурень другого порядку передбачає виключення точок  $\mathbf{k}' = \mathbf{k}$  із суми в рівнянні (12)<sup>1</sup>. Тим не менше, щоб відновити аналітичність інтегранта (підінтегральної функції), що виникає в результаті інтегрального подання сум по  $\mathbf{k}'$  і  $\mathbf{k}$ , вираз (12) слід доповнити граничним переходом  $\lim(\mathbf{k}' \rightarrow \mathbf{k})$ , як це було підкреслено в оригінальній роботі Йосиди [8]. При застосуванні до дроби в рівнянні (12), цей ліміт виробляє  $-\delta(\varepsilon_{\mathbf{k}} - \varepsilon_{\mathbf{F}})$ , де  $\varepsilon_{\mathbf{F}}$  енергія Фермі. Тоді прямі обчислення дають вираз добавки до рівняння. (12) за рахунок такого тлумачення  $\mathbf{k} \neq \mathbf{k}'$  в сумі (12) у формі

$$\delta \hat{H}_{SS}^{(2)} = \frac{\beta^2}{4V} D(\varepsilon_{\mathbf{F}}) \sum_{j, j'(\neq j)} \mathbf{S}_j \mathbf{S}_{j'} = \frac{\beta^2 n_e \chi_e^{(1)}}{2V g_e^2 \mu_B^2} \sum_{j, j'(\neq j)} \mathbf{S}_j \mathbf{S}_{j'}, \quad (13)$$

де  $D(\varepsilon_{\mathbf{F}}) = 3n_e/4\varepsilon_{\mathbf{F}}$  – електронна густина станів кожної спінової гілки на поверхні Фермі. Порівняння  $\delta \hat{H}_{SS}$  (13) з рівнянням (8) показує, що інтегрант в інтегральному наближенні сум по  $\mathbf{k}$  і  $\mathbf{k}'$  в рівнянні (12) перетворюється на гладку аналітичну функцію, додаючи гамільтоніан першого порядку  $\hat{H}_{SS}^{(1)} = \delta \hat{H}_{SS}$  до ефективного гамільтоніану, що представляє спин-спінову взаємодію другого порядку  $\hat{H}_{SS}^{(2)}$ . Розрахунок цих інтегралів звичайним способом відтворює загальний вираз для взаємодій RKKY:

$$\hat{H}_{\text{RKKY}} = \hat{H}_{SS}^{(1)} + \hat{H}_{SS}^{(2)} = \frac{1}{2} \sum_{j, j'(\neq j)} J_{\text{RKKY}}(\mathbf{R}_{j, j'}) \mathbf{S}_j \mathbf{S}_{j'}, \quad (14)$$

де ефективна константа опосередковані носіями взаємодії між іонами, віддаленими на  $\mathbf{R}^{j, j'}$  є

$$J_{\text{RKKY}}(\mathbf{R}^{j, j'}) = \frac{2\beta^2 k_{\mathbf{F}}^{(3)} \chi_{\text{Pauli}}}{\pi g_e^2 \mu_B^2} F_{\text{RKKY}}(2k_{\mathbf{F}} R_{j, j'}) \quad (15)$$

<sup>1</sup> Інші особливості точки  $\mathbf{k}' \neq \mathbf{k}$  при  $|\mathbf{k}'| = |\mathbf{k}|$  не є актуальними, оскільки показник  $\exp[i(\mathbf{k} - \mathbf{k}')\mathbf{R}_{j, j}]$  зводиться нанівець їх внесок.

і

$$F_{\text{RKKY}}(x) = \frac{x \cos x - \sin x}{x^4}. \quad (16)$$

Рівняння (14) разом із визначеннями (15) та (16) зазвичай називають “непрямою обмінною взаємодією RKKY”. Кожен доданок у сумах (14) відповідає спин-спіновій взаємодії у одній парі LSM. З цієї причини коефіцієнт 1/2 гарантує кожній парі врахування один раз.

Вираз (15) отримано для випадку системи вироджених носіїв, і є не придатне для випадку одного носія заряду. Але залежність  $J_{1,1}$  (1a) насправді є залежністю обмінної константи CIEI від густини одного носія на одному LSM. Можна отримати, що множник до  $F_{\text{RKKY}}(x)$  у (15) обернено пропорційний густині вільних носіїв заряду в степені 4/3 в області густин, що відповідають виродженому стану носіїв з урахуванням залежностей  $k_{\mathbf{F}}$  та  $\chi_{\text{Pauli}}$  від густини носіїв  $n_e$ . Отже, якщо розглянути залежність  $J_{\text{RKKY}}$  у DMS від об'єму локалізації постійної кількості носіїв, ми отримаємо результат, подібний до рівняння (1a).

Слід підкреслити, що другий порядок опосередковані носіями взаємодії у вигляді рівняння (14) забезпечує скінченну силу ефективної обмінної взаємодії (15) для будь-якої скінченної міжіонної відстані  $|R_{j, j'}|$  у разі скінченної концентрації носіїв. З цієї точки зору додавання (13) до гамільтоніану (12) у вигляді першого порядку (8) не змінює цю взаємодію в межі  $V \rightarrow \infty$  при  $n_e = \text{const}$ , оскільки  $\hat{H}_{SS}^{(1)} \xrightarrow{V \rightarrow \infty} 0$ . Тим не менше, цей висновок не виправдовується, якщо ми переходимо від локальних (інтенсивних) індивідуальних магнітних властивостей LSM до термодинамічних (екстенсивних) властивостей, які характеризують фазовий стан у всій системі. Як було показано, термодинамічна межа не зникає для молекулярного поля, породженого гамільтоніаном (5), за умови скінченної концентрації  $n_m$ . Отже, слід очікувати адитивних внесків у термодинамічні потенціали, що впливають із гамільтоніанів першого та другого порядків  $\hat{H}_{SS}^{(1)}$  і  $\hat{H}_{SS}^{(2)}$ <sup>2</sup>. Зокрема, точно розв'язувана модель для спінового кластера [12] підтверджує цей загальний результат.

<sup>2</sup> Слід нагадати, що RKKY в інтегральній формі якраз передбачає внески як першого, так і другого порядку збурень.

#### 4. RKKY-модельовання фазового переходу

Розглянемо критичну температуру фазового переходу FM, розраховану для взаємодії RKKY в наближенні поля Вейсса. Останнє нав'язує рівні середні значення для всіх LSM так, що поле Вейсса

$$\mathbf{B}_W = \frac{1}{g_m \mu_B} \sum_{j'} J_{\text{RKKY}}(\mathbf{R}_{j,j'}) \langle \mathbf{S}_{j'} \rangle \quad (17)$$

рівномірно поляризує кожен магнітний іон. Отриману спінову поляризацію можна знайти з точки зору функції Бриллюена  $B_S(x)$  як  $\langle S \rangle = -SB_s(g_m \mu_B B_W B/T)$ . Останнє рівняння оцінює критичну температуру FM фазового переходу як

$$T_C = \frac{1}{3} S(S+1) \sum_{j'} J_{\text{RKKY}}(\mathbf{R}_{j,j'}). \quad (18)$$

У припущенні випадкового розподілу LSM з постійною густиною  $n_m$  інтегральне представлення суми по  $j'$  набуває вигляд:

$$\sum_{j'} J_{\text{RKKY}}(\mathbf{R}_{j,j'}) \rightarrow n_m \int_0^\infty J_{\text{RKKY}}(r) 4\pi r^2 dr. \quad (19)$$

Підстановка цього наближення до рівняння (18) відтворює вираз (6) для температури Кюрі, отриманий з точки зору теорії збурень першого порядку. Вочевидь, що застосування іншого наближення для розподілу LSM (наприклад, гратчастого газу або корельованого розподілу LSM) порушує тотожність рівнянь (18) та (6).

Щоб пояснити такий збіг, повернімося до рівняння (11) і розглянемо його як енергію спіна  $\mathbf{S}_j$  в ефективному полі Вейсса

$$\mathbf{B}_W^{(2)} = \frac{\beta^2}{2g_m \mu_B V^2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}' (\neq \mathbf{k})} \frac{f(\varepsilon_{\mathbf{k}}) - f(\varepsilon'_{\mathbf{k}'})}{\varepsilon_{\mathbf{k}} - \varepsilon'_{\mathbf{k}'}} \times \sum_{j,j' (\neq j)} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}') \cdot (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_{j'})} \langle \mathbf{S}_{j'} \rangle. \quad (20)$$

Незалежність  $\langle \mathbf{S}_j \rangle = \langle \mathbf{S} \rangle$  від конкретного місця розташування спіну відразу спрощує підсумовування по  $j'$ . Якщо ідеальний газ моделює розподіл магнітних іонів по кристалу, сума по  $j'$  дає ненульовий результат лише для  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$  що, в свою чергу, зводить нанівець  $\mathbf{B}_W^{(2)}$ . Цей результат демонструє, що звичайне використання однорідного розподілу магнітних іонів призводить до виключення

збурень другого порядку. З іншого боку, доповнення сингулярності при  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$  межею  $\lim(\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}')$  відтворює внесок  $\mathbf{B}_W^{(1)}$  (12), який фактично є включений до  $\mathbf{B}_W^{(2)}$ . Це означає, що (12) не слід зайвий раз враховувати як самостійний внесок у поле Вейсса (19). Таким чином, проста оцінка  $T_C$  в 1-му наближенні (8) стає еквівалентною більш складному підсумовуванню спин-спінових взаємодій RKKY по положенням магнітних іонів у кристалі.

Однак наш підхід може бути застосований до більш реалістичного розподілу LSM, який не еквівалентний постійній імовірності, незалежній від структури кристала. В якості першого очевидно узагальнення розглянемо апроксимацію гратчастого газу, а не модель вільного газу. Найпростіший спосіб оцінки ефекту розподілу гратчастого газу полягає в явному обмеженні мінімальної між-іонної відстані  $d$ . На більшій відстані постійна ймовірність, пропорційна концентрації  $n_m$ , ще наближається до функції дискретного розподілу по місцях решітки. Така поправка зменшує силу молекулярного поля на коефіцієнт  $\delta = \frac{4\pi}{3} n_m d^3$  за умови  $k_F d \ll 1$ . Ця корекція може бути не надто малою порівняно з одиницею. Наприклад, у DMS з решіткою сфалериту короткодіапазонна просторова кореляція змінює вираз (8) для температури Кюрі на коефіцієнт  $1 - \frac{\sqrt{2\pi}}{3} x$ , що зменшує  $T_C$  на 15% при рівні заміщення LSM  $n_m \Omega = x = 10\%$  (тут  $\Omega$  – об'єм напівпровідникової примітивної комірки). Очевидно, той самий результат дає підхід RKKY [рівняння (14)] за умови, що інтегрування за зменшувальною областю враховує просторові кореляції в рівнянні (20).

Інший, нетривіальний приклад показує випадок приблизної оцінки  $T_C$  на основі зменшення сили взаємодії RKKY (15) для віддалених LSM. Це зменшення взаємодії також призводить до зменшення колективного ефекту віддалених LSM до поля Вейсса. Останні можна оцінити за допомогою взаємодії RKKY деякого LSM, розташованого в місці  $\mathbf{R}_j$  з скінченим числом LSM, що оточують  $\mathbf{R}_j$  [10]. У такому випадку внесок першого порядку (8), (13) зникає, у припущенні великого об'єму кристалу і скінченого числа  $N_{m'}$  LSM, розташованих у місцях решітки  $\mathbf{R}_{j'}$  всередині відведеного об'єму  $V'$ , які підтримують концентрацію  $n_m = N_{m'}/V'$ . Таким чином, врахування кінцевої кількості LSM може приблизно оцінювати поле Вейсса з точки зору рівняння (20), отриманого у другому порядку по

СІЕІ. Поява ненульового ефекту рівняння (20) виглядає не дивно, оскільки підсумовування за обмеженими числами  $\mathbf{R}_j$  в рівнянні (20) не обмежує підсумовування по векторах хвиль із певними електронними станами з  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$ . Крім того, оцінка  $T_C$  передбачає застосування  $\mathbf{B}_W^{(2)}$  до всіх LSM у всьому кристалі. Детальний аналіз поля Вейсса  $\mathbf{B}_W^{(2)}$  в кластері LSM, вкладеному у великий кристал, виходить за рамки даної роботи. Однак зауважимо, що кластер з  $N_{m'}$  LSMs в об'ємі  $V'$  фактично імітує DMS з фіксованою концентрацією LSM  $n_m$  там, де поле Вейсса є  $\mathbf{B}_W^{(1)}$ . Такий інтуїтивний підхід припускає, що поле  $\mathbf{B}_W^{(2)}$  добре апроксимується  $\mathbf{B}_W^{(1)}$  при досить великому  $V'$ . Правильність такого наближення оцінює відхилення інтеграла в рівнянні (19) від розрахунку для кінцевої верхньої межі  $2k_F(V')^{1/3}$ . Як видно, будь-який розгляд не передбачає інтерференції  $\mathbf{B}_W^{(2)}$  і  $\mathbf{B}_W^{(1)}$  для оцінки поля Вейсса.

Більш точна оцінка  $T_C$  передбачає включення до формалізму, розробленого вище, міжіонної обмінної взаємодії, не пов'язаної з носіями. Ця антиферомагнітна (AFM) взаємодія у найближчих сусідніх парах LSM може перевищувати ефект обмінного поля, викликаного носієм, і теплову енергію  $T$ , (як відмічалось вище,  $T$  є вираженою у енергетичних одиницях) і встановлює нульові сумарні спінові моменти цих пар. Як результат, такі найближчі сусідні LSM випадають з розгляду, що виглядає як зменшення ефективної густини LSM до  $x' < x$  [21]. Введення феноменологічного параметра  $x'$  покращує узгодження експериментальних даних та розрахунків спінового розщеплення екситонних спектрів. Така апроксимація АФМ взаємодії між іонами також чітко застосовується для розгляду магнітних (включаючи FM) властивостей DMS в термінах поля Вейсса, розрахованих у першому порядку. У той же час, виключення з розгляду АФМ-пов'язаних пар посилює відхилення фактичного розподілу LSM від моделі ідеального газу з різницею розрахунку у наближенні другого порядку і розрахунку з середнім полем, отриманим у першому порядку [3–5], що впливає в наслідок цього.

## 5. Висновок

Ця робота ясно демонструє, що наближення молекулярного поля, застосоване до виразу непрямої

взаємодії LSM, отриманої з другого порядку теорії збурень у вигляді суми експонент (12), виявляє занулення цього внеску для всіх електронних станів з хвильовими векторами  $\mathbf{k} \neq \mathbf{k}'$  за умови моделювання розподілу LSM моделлю вільного газу. Точки  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$  повинні бути виключені з внеску другого порядку у формалізмі теорії збурень. Однак, за замовчуванням ці стани зазвичай додають до формалізму, оскільки  $\text{limit } \mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'$  описує ефект, котрий не залежить від взаємної локалізації іонів. З цієї точки зору, просторове усереднення взаємодії RKKY (16) призводить до його однорідної частини, яка виступає доповненням до непрямої взаємодії в межі  $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'$ , що збіглася з ефективним гамільтоніаном (8) взаємодії першого порядку. Іншими словами, трактовка молекулярного поля для взаємодії RKKY дає той самий результат, який можна отримати з урахуванням лише збурення першого порядку за допомогою СІЕІ. Однак це не стосується більш досконалих теорій, які враховують рандомізацію локальних обмінних полів у певних місцях LSM [14, 15] або використовують бездисперсійну зонну структуру [13], що порушує малість константи обміну  $\beta N_0$  порівняно з шириною зони  $W \rightarrow 0$ .

Крім того, ця стаття додає попередні аналізи з особливими ефектами другого порядку, що впливають з різниці розподілу гратчастого газу та ідеального газу для LSM у DMS.

*Участь СМР у цій роботі частково підтримана проектом П-05-20. №11 відділення фізики та астрономії НАН України Програми підтримки пріоритетних державних досліджень.*

1. A.V. Komarov, S.M. Ryabchenko, O.V. Terletsii, I.I. Zheru, R.D. Ivanchuk. Magneto-optical studies and the double opticomagnetic resonance of the exciton band in  $\text{Mn}^{2+}$ -doped CdTe. *JETP* **46**, 318 (1977), [translate from *Zh. Exp. Teor. Fiz.* **73**, 608 (1977)].
2. *Introduction to the Physics of Diluted Magnetic Semiconductors*. Edited by J. Kossut, J.A. Gaj (Springer, 2010).
3. E.A. Pashitskii, S.M. Ryabchenko. Magnetic ordering in semiconductor with magnetic impurities. *Sov. Phys. Solid State* **21**, 322 (1979). [Translate from *Fiz. Tverd. Tela* **21**, 545 (1979)].
4. C. Zener. Interaction between the  $d$ -shells in the transition metals. *Phys. Rev.* **81**, 440 (1951).
5. C. Zener. Interaction between the  $d$ -shells in the transition metals. III. Calculation of the Weiss factors in Fe, Co, and Ni. *Phys. Rev.* **83**, 299 (1951).

6. M.A. Ruderman, C. Kittel. Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons. *Phys. Rev.* **96**, 99 (1954).
7. T. Kasuya. A theory of metallic ferro- and antiferromagnetism on Zener's model. *Progress of Theoretical Physics* **16**, 45 (1956).
8. K. Yosida. Magnetic properties of Cu–Mn alloys. *Phys. Rev.* **106**, 893 (1957).
9. J.H. Van Vleck. Note on the interactions between the spins of magnetic ions or nuclei in metals. *Rev. Mod. Phys.* **34**, 681 (1962).
10. T. Story, G. Karczewski, L. Swierkowski, R.R. Galazka. Magnetism and band structure of the semimagnetic semiconductor Pb–Sn–Mn–Te. *Phys. Rev. B* **42**, 10477 (1990).
11. T. Dietl, H. Ohno. Dilute ferromagnetic semiconductors: Physics and spintronic structures. *Rev. Mod. Phys.* **86**, 187 (2014).
12. Y.G. Semenov, S.M. Ryabchenko. Exactly solvable model for carrier-induced paramagnetic-ferromagnetic phase transition in diluted magnetic semiconductors. *Physica E* **10**, 165 (2001).
13. Y.G. Semenov, V.A. Stephanovich. Suppression of carrier-induced ferromagnetism by composition and spin fluctuations in diluted magnetic semiconductors. *Phys. Rev. B* **66**, 075202 (2002).
14. Y.G. Semenov, V.A. Stephanovich. Enhancement of ferromagnetism in uniaxially stressed dilute magnetic semiconductors. *Phys. Rev. B* **67**, 195203 (2003).
15. P. Grunberg, R. Schreiber, Y. Pang, U. Walz, M.B. Brodsky, H. Sowers. Layered magnetic structures: Evidence for antiferromagnetic coupling of Fe layers across Cr interlayers. *J. Appl. Phys.* **61**, 3750 (1987).
16. M. Getzlaff. *Fundamentals of Magnetism* (Section 15.1 Interlayer Exchange Coupling (IEC) Across a Non-Magnetic Spacer Layer) (Springer, 2008) [ISBN: 978-3-540-31152-2].
17. P.J.H. Bloemen. Interlayer exchange coupling and giant magnetoresistance in magnetic multilayers. *Acta Physica Polonica A*, **89**, 277 (1996).
18. F. Stobiecki, T. Lucicski, R. Gontarz, M. Urbaniak. Influence of the annealing process on the gmr effect in permalloy/copper multilayers. *Materials Science Forum* **287–288**, 513 (1998).
19. Y.G. Semenov, V.G. Abramishvili, A.V. Komarov, S.M. Ryabchenko. Magneto-optical investigations of diluted Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>S magnetic semiconductors in the B-exciton region. *Phys. Rev. B* **56**, 1868 (1997).
20. S.M. Ryabchenko, Yu.G. Semenov, O.V. Terletski. Exchange-scattering effects on band energies in magnetically mixed semiconductors. *Phys. Stat. Sol. (b)* **144**, 661 (1987).
21. J. Cibert, D. Scalbert. Diluted magnetic semiconductors: Basic physics and optical properties. In: *Spin Physics in Semiconductors. Springer Series in Solid-State Sciences*. Edited by M.I. Dyakonov (Springer, 2008), **157**, p. 389.

Одержано 11.11.20

Yu.G. Semenov, S.M. Ryabchenko

MOLECULAR-FIELD  
APPROXIMATION IN THE THEORY  
OF FERROMAGNETIC PHASE TRANSITION  
IN DILUTED MAGNETIC SEMICONDUCTORS

In this pedagogical paper, the comparative analysis of two common approaches describing the ferromagnetic phase transition in diluted magnetic semiconductors (DMS) is expounded in terms of the Weiss field approximation. Assuming a finite spin polarization of the magnetic ions, the treatment of carrier-ion exchange interaction in the first order evokes a homogeneous Weiss molecular field that polarizes the spins of free carriers. In turn, this spin polarization of the free carriers exerts the effective field that may stabilize the DMS spin polarization below a critical temperature  $T_C$ . The treatment of such self-consistent spontaneous DMS magnetization can be done in terms of the spin-spin interaction independent of the inter-ion distance and the infinitesimal in thermodynamic limit. On the other hand, by additionally accounting for the second-order effects of the carrier-ion exchange interaction, we can treat a Weiss field in terms of the Ruderman–Kittel–Kasuya–Yosida indirect spin-spin interaction, which oscillates and does not disappear at finite inter-ion distances in the case of a finite concentration of carriers. These both approaches result in the same Curie temperature  $T_C$  provided a non-correlated homogeneous random distribution of the localized spin moments over the sample volume. We discuss the origin of such coincidence and show when this is not a case in other more realistic models of the conducting DMSs.

*Keywords:* diluted magnetic semiconductors, ferromagnetic ordering, mean-field approximation, RKKY interaction.