

ЭЛЕКТРОННАЯ СТРУКТУРА $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$

Повзнер А.А., Ясюлевич И.А., Филанович А.Н.

ФГАОУ ВПО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», Екатеринбург, e-mail: a.a.povzner@urfu.ru

Твердые растворы $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ являются важными прототипами спинтронных материалов, так как обладают хорошей технологической совместимостью с кремнием. В последнее время исследование их физических свойств возобновилось с новой силой из-за открытия новых интересных фактов, таких как связь кристаллографической и спиновой киральности. В настоящей работе был выполнен первопринципный расчет электронной структуры по схеме LDA+U (в методе FP-LAPW) без спиновой разбалансировки в пакете Elk, с использованием экспериментальных данных о кристаллической структуре для разных концентраций твердого раствора $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$. Первопринципный расчет плотностей электронных состояний $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ выполнен для концентраций $x = 0,1, 0,3, 0,5$. Проведен анализ плотностей электронных состояний. Рассмотрено изменение фактора стонеровского усиления для различных составов $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$. В результате выполненной работы получено, что при переходе от кристаллографически правых образцов к кристаллографически левым качественное изменение плотности электронных состояний не происходит.

Ключевые слова: электронная структура, LDA, FP-LAPW, плотность состояний, киральность, FeCoSi

ELECTRONIC STRUCTURE OF $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$

Povzner A.A., Yasyulevich I.A., Filanovich A.N.

Ural Federal University named after First President of Russia B.N. Yeltsin, Ekaterinburg, e-mail: a.a.povzner@urfu.ru

$\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ solid solutions are important prototype spintronic materials, as they have good technological compatibility with silicon. In recent years, the studies of their physical properties resumed with renewed vigor due to the discovery of new and interesting facts such as connection of crystallographic and spin chirality. In this paper we have performed *ab initio* non spin-polarized calculations of the electronic structure in the LDA+U scheme (within the method of FP-LAPW) as implemented in the Elk code with experimental data on the crystal structure of the $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ solid solutions. *Ab initio* calculations of the density of electronic states $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ are made for concentrations of $x = 0,1, 0,3, 0,5$. The analysis of the density of electronic states is performed. The changes in the Stoner factor gain of various compositions $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ are considered. As a result of the investigations we have obtained that the transition from the right-handed crystallographic configuration to the left-handed crystallographic configuration does not lead to quality changes in the density of electronic states.

Keywords: electronic structure, LDA, FP-LAPW, density of states, chirality, FeCoSi

Методом рассеяния поляризованных нейтронов [8] было показано что спиновые спирали в кубических магнетиках $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ могут быть реализованы как в правой, так и в левой конфигурациях киральной симметрии для различных концентраций структуры $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ вдоль оси (111) для кобальта. В исследовании [6] демонстрируется, что для $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ спиновая киральность обратна кристаллографической киральности. Что бы выяснить как связана спиновая и кристаллографическая киральность необходимо прежде всего изучить электронную структуру $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$. Электронная структура $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ описывалась ранее в работах [7, 10] она рассчитывалась в методе LSDA (FP-LAPW) со спиновой разбалансировкой. В данных расчетах за основное состояние брался слабый ферромагнетизм, что не соответствует экспериментально наблюдаемой геликоидальной структуре, кроме того в области парамагнитных температур эти результаты неприменимы.

Причина, по которой следует отказаться от LSDA в пользу LDA+U в том, что в DFT

одноэлектронный потенциал действует одинаково на состояния заполненных и пустых орбиталей. Это приводит к тому, что частично заполненная t_{2g} – зона с направлением спина «вниз» для $\text{Fe}_{1-x}^{2g}\text{Co}_x\text{Si}$ остается металлической в LSDA. Применение метода LDA+U радикально меняет результат. Орбитально-зависимый потенциал дает расщепление энергий заполненных и пустых d-состояний примерно на величину среднего кулоновского взаимодействия U. Пустые e_g – состояний поднимаются по энергии вверх, в то время как заполненные состояния сдвигаются вниз [1].

В настоящей работе расчеты электронной структуры выполнены по схеме LDA+U (в методе FP-LAPW) без спиновой разбалансировки в пакете Elk. Уровень Ферми находится в нуле энергии. Использовались экспериментальные данные [6] о кристаллической структуре, согласно которым $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ обладает группой симметрии $P2_13$ и восьмью атомами в элементарной ячейке. Параметры решетки, применяемые в наших расчетах, были заимствованы из экспериментальных работ [3].

Расчет проводился при параметре $U = 1\text{eV}$ [9] с учетом спин орбитального взаимодействия. Значение $J_H = 0,49\text{ эВ}$ было определено в рамках метода, предложенного в, который базируется на использовании потенциала Юкавы и эффективной длины экранирования. Использовался обменно-корреляционный потенциал LDA [8]. Каждый из наших расчетов был выполнен на $16 \times 16 \times 16$ k-сетке, маффин-тин радиусы $R_{Fe(Co)} = 2,4\text{ a.u.}$, $R_{Si} = 2,2\text{ a.u.}$. Параметр обрезания, дающий число плоских волн в межузельной области принимался $R_{mi} * K_{max} = 7$, где K_{max} максимальное значение вектора обратной решетки, используемого в разложении плоских волн в этой зоне. Критерии сходимости, которые мы использовали: изменение эффективного потенциала, а так же изменение полной энергии на последующих итерациях должны были быть меньше чем 0.000001 Ha и 0.0001 Ha соответственно. Изменение концентрации кобальта в $Fe_{1-x}Co_xSi$ учитывалось с помощью параметра «chgexs», который контролирует количество заряда в элементарной ячейке. В нашем случае с помощью этого параметра каждому атому железа придавался дополнительный заряд, чтобы учесть концентрацию легирующего элемента (кобальта). Нейтральность заряда в ячейке сохранялась во всех расчетах.

Координаты атомов Fe, Co и Si применяемые для расчета разных энантиоморфных форм $Fe_{1-x}Co_xSi$:

$$(x, x, x), ((1/2) + x, (1/2) - x, -x), (-x, (1/2) + x, (1/2) - x), ((1/2) - x, -x, (1/2) + x) \quad (1)$$

где x принимает соответственно значения $x_{Fe(Co)} = 0,8632$ и $x_{Si} = 0,1574$ для правой формы, $x_{Fe(Co)} = 0,1376$ и $x_{Si} = 0,8426$ для левой формы (левая форма соответствует замене x на разность $1-x$) [6].

Полученная плотность электронных состояний при $x = 0,1$ качественно согласуются с данными [7], в частности имеем узкую щель около $0,1\text{eV}$. Для составов с $x = 0,3$ и $0,5$ расчеты ранее не проводились.

Обе родительские системы, как известно, являются немагнитными. FeSi парамагнитный полупроводник с узкой зонной щелью, а CoSi диамагнитный полуметалл. DOS FeSi и CoSi очень похожи, разница – в жестком сдвиге E_F . В случае FeSi E_F лежит в щели в середине d зоны демонстрируя высокую плотность состояний вблизи границ щели. Наоборот E_F в CoSi лежит в энергетической области где DOS является очень низкой что является характерным для полуметалла. Твердые растворы этих соединений так же имеют B20 кристаллическую структуру, расположение уровня Ферми

в этих растворах соответствует промежуточному значению их родительских систем и коррелирует с изменением концентрации Co, о чем свидетельствуют наши данные. Для широкой области концентраций ($0,05 < x < 0,8$) $Fe_{1-x}Co_xSi$ сплавы являются металлическими и имеют геликоидальную магнитную структуру с большим вектором спирали $10\text{--}100\text{nm}$ [6].

В выполненных расчетах при изменении концентрации $Fe_{1-x}Co_xSi$, а следовательно так же спиновой и кристаллографической киральности, изменяется не только положение уровня Ферми но и ширина щели от $0,086\text{ eV}$ до $0,156\text{ eV}$, что указывает на то что при данных концентрация $Fe_{1-x}Co_xSi$ остается узкозонным полупроводником. В результате расчета плотностей электронных состояний $Fe_{1-x}Co_xSi$ для разных концентраций x , скачкообразного изменения плотности электронных состояний при переходе от кристаллографически правых образцов при концентрациях $x = 0,1$ к кристаллографически левым при концентрациях $x = 0,3, 0,5$ не выявлено.

Очень важным параметром является фактор S стонеровского усиления [2]

$$S = (1 - U g_0(\epsilon_F))^{-1} \quad (2)$$

Учитывая, что в рамках теории Стонера:

$$T_c \propto |S|^{-1/2} \quad (3)$$

можно оценить зависимость температуры Кюри от концентрации и сравнить полученную зависимость с экспериментальными данными [4, 5]. Для рассматриваемых составов фактор Стонера равен $0,99, 0,972, 1,22$ соответственно. В результате получаем согласие с экспериментом для концентраций $x = 0,1, 0,3$, что подтверждает правильность расчета плотностей электронных состояний для разных концентраций $Fe_{1-x}Co_xSi$. В тоже время имеем расхождение с экспериментальными данными для концентрации $x = 0,5$.

Далее нами был проведен расчет левой формы $Fe_{0,9}Co_{0,1}Si$ (в работе [6] указывается, что для такой концентрации x методом рассеяния поляризованных нейтронов было установлено, что существует только правая форма). Проанализировав плотности электронных состояний для данной концентрации x для левой и правой формы мы пришли к выводу, что в расчетах по схеме LDA+U (в методе FP-LAPW) в пакете Elk плотности электронных состояний не значительно отличаются друг от друга (различаются только в окрестностях 2 пиков удаленных на большой энергетической интервал от уровня Ферми).

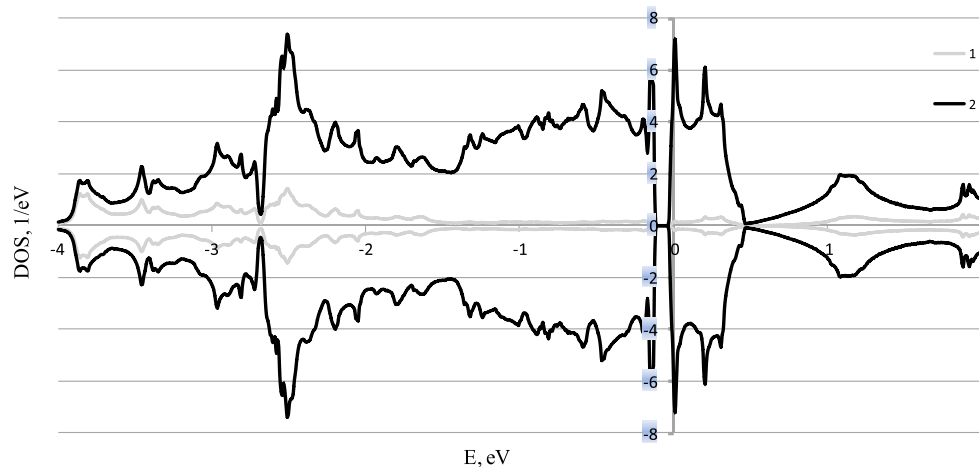


Рис. 1. Расчет плотностей электронных состояний правой формы $Fe_{0.9}Co_{0.1}Si$ $1 - s+p$ и $2 - d$ электронов в рамках LDA+U

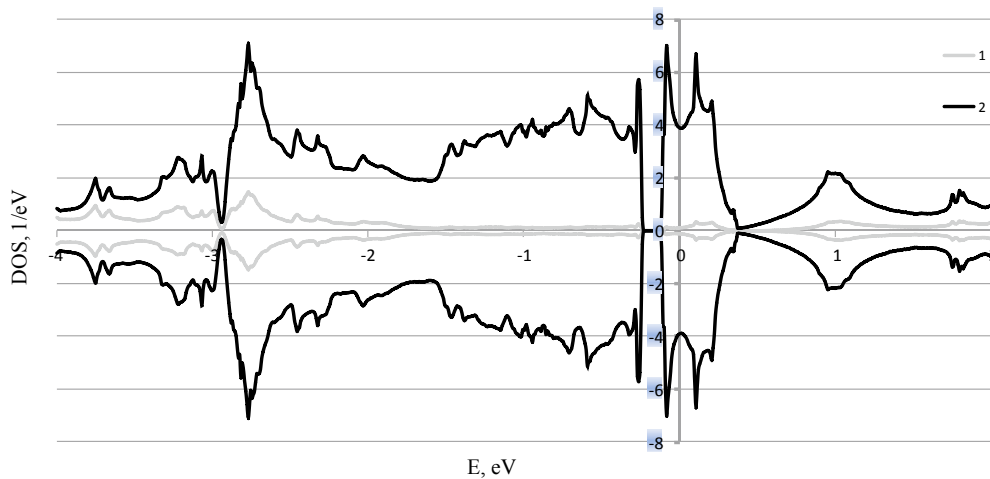


Рис. 2. Расчет плотностей электронных состояний левой формы $Fe_{0.7}Co_{0.3}Si$ $1 - s+p$ и $2 - d$ электронов в рамках LDA+U

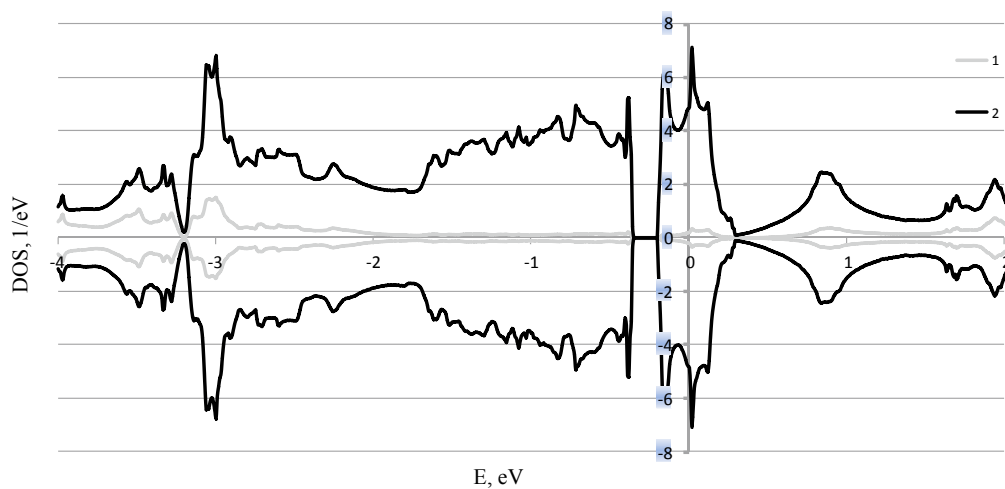


Рис. 3. Расчет плотностей электронных состояний левой формы $Fe_{0.5}Co_{0.5}Si$ $1 - s+p$ и $2 - d$ электронов в рамках LDA+U

В работе [6] представлены интересные результаты о спиновой киральности $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, в частности показано, что в $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ спираль переходит от лево-вращающейся при концентрациях $x = 0,1, 0,15$ к право-вращающейся при концентрациях $x = 0,2, 0,25, 0,3, 0,5$, при этом образцы переходят из кристаллографически правых образцов к кристаллографически левым при тех же концентрациях, что указывает на связь спиновой и кристаллографической киральности. Однако проведенный анализ плотностей состояний $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ для концентраций $x = 0,1$ для левой и правой формы показывает, что они отличаются не значительно, а при переходе от кристаллографически правых образцов $x = 0,1$ к кристаллографически левым $x = 0,3, 0,5$ качественное изменение плотности электронных состояний не происходит. Полученные значения температур Кюри соответствуют экспериментальным, только для концентраций $x < 0,5$. Однако дальнейшее исследование электронных и магнитных свойств $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ в любом случае требует учета спин-флуктуационных эффектов, а также кирального взаимодействия, приводящего к возникновению геликоидального ферромагнетизма.

Список литературы

1. Изюмов Ю.А., Анисимов В.И. Электронная структура соединений с сильными корреляциями. – М.: НИЦ «РХД», 2003. – С. 376.
2. Повзнер А.А., Волков А.Г., Филанович А.Н. Электронная структура и магнитная восприимчивость почти магнитных металлов (на примере палладия и платины) // ФТТ. – 2010. – Т. 52. – Вып. 2. – С. 1879–1884.
3. Asanabe S., Shinoda D., Sasaki Y. Semimetallic properties of $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ solid solutions. – *Phys. Rev. A.* 1964, Vol.134. P. 774.
4. Beille J., Bloch D., Jaccarino V., Wernick J.H., Wertheim G.K. Effects of hydrostatic pressure on the magnetic properties of disorder monosilicide $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ alloys // *J. de Physique.* – 1997. –Vol. 38. – P. 339.
5. Beille J., Bloch D., Towfiq F., Voiron J. The magnetic properties of $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ and $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Ti}$ alloys // *J. Magnet. And Magnet. Mater.* – 1979. – Vol. 10. – P. 265.
6. Grigoriev S.V., Chernyshov D., Dyadkin V.A., Dmitriev V., Maleyev S.V., Moskvina E.V., Menzel D., Schoenes J., and Eckert H. Crystal Handedness and Spin Helix Chirality in $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ // *Phys. Rev. Lett.* – 2009. – Vol. 102. – P. 037204.
7. Mazurenko V.V., Shorikov A.O., Lukoyanov A.V., Kharlov K., Gorelov E., Lichtenstein A.I., Anisimov V.I. Metal-insulator transition and magnetism in correlated band insulator: FeSi and $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ // *Phys. Rev. B.* – 2010. – Vol. 81. – P. 125131.
8. Perdew J.P. and Wang Y. Accurate and simple analytic representation of the electron-gas correlation energy // *Phys. Rev. B.* – 1992. –Vol. 45. – P. 13244.
9. Urasaki K., Saso T. Thermal and dynamical properties of the two-band Hubbard model compared with FeSi // *Phys. Rev. B.* – 1998. – Vol. 58. –P. 15528.
10. Zhi-Hui H., Wei H., Young S. and Zhao-Hua C. First principles study on the electronic structure and magnetism of $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ alloys // *Chin. Phys. Soc.* – 2007. – Vol. 16. – P. 3863.