

## ВЫЧИСЛЕНИЕ МАГНИТОКРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ АНИЗОТРОПИИ СПЛАВОВ Fe-Ga МЕТОДОМ МАГНИТНОГО ВРАЩАЮЩЕГО МОМЕНТА

М. В. Матюнина<sup>1,a</sup>, М. А. Загребин<sup>1,2,b</sup>, В. В. Соколовский<sup>1,2,c</sup>,  
В. Д. Бучельников<sup>1,2,d</sup>

<sup>1</sup> Челябинский государственный университет, Челябинск, Россия

<sup>2</sup> Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС», Москва, Россия

<sup>a</sup> *matunins.fam@mail.ru*, <sup>b</sup> *miczag@mail.ru*, <sup>c</sup> *vsokolovsky84@mail.ru*, <sup>d</sup> *buche@csu.ru*

Приведены результаты исследования магнитных свойств объёмно-центрированных кубических структур сплавов  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ , полученные с использованием метода теории функционала плотности. При помощи метода магнитного вращающего момента, реализованного в программном пакете SPR-KKR, получена зависимость энергии магнитокристаллической анизотропии (МКА) от степени малых тетрагональных искажений. Показано, что в случае полностью разупорядоченной фазы A2 и частично упорядоченной фазы B2 зависимость энергии МКА от деформации практически линейная и имеет положительный наклон, в то время как для полностью упорядоченной структуры D0<sub>3</sub> данная зависимость демонстрирует сложное нелинейное поведение. Основной вклад в тетрагональную магнитострикцию в области концентраций  $21 \leq x \leq 25$  ат.% вносит фаза B2. Величина тетрагонального модуля упругости, полученная также при помощи программного пакета SPR-KKR, убывает с увеличением концентрации Ga.

**Ключевые слова:** метод магнитного вращающего момента, энергия магнитокристаллической анизотропии, магнитострикция, тетрагональный модуль упругости.

### Введение

Теория функционала плотности — мощный инструмент, позволяющий находить как новые свойства уже хорошо изученных материалов, так и предсказывать совершенно новые материалы. На сегодняшний день имеющиеся вычислительные мощности позволяют изучать многие свойства новых материалов, в частности их структурные и магнитные свойства. Одной из важных характеристик магнитных материалов является магнитокристаллическая анизотропия. Величина МКА влияет на такие важные свойства магнетиков, как удельная магнитная энергия и магнитострикция. Первое свойство позволяет создавать мощные постоянные магниты, второе — различного рода датчики и актуаторы, которые находят широкое применение в технике, приборостроении и магнитоэлектронике. Своим происхождением магнитокристаллическая анизотропия обязана наличию в магнетиках спин-орбитального

---

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 19-32-90138 (расчёты энергии магнитокристаллической анизотропии и магнитострикции) и РНФ в рамках научного проекта № 18-12-00283 (расчёты модулей упругости). М.А.З. выражает благодарность Фонду поддержки молодых учёных ЧелГУ. М.А.З., В.В.С. и В.Д.Б. благодарят НИТУ «МИСиС» (проект № K2-2020-018).

взаимодействия. В переходных  $3d$ -металлах спин-орбитальное взаимодействие сравнительно слабое. Обычно МКА вычисляется путём сравнения энергий магнетика при двух различных ориентациях намагниченности. При этом из-за малости спин-орбитального взаимодействия может возникнуть достаточно большая погрешность в определении энергии МКА, связанная с точностью вычислений в современных методах теории функционала плотности. В 1996 г. Ванг (Wang) с соавторами [1] предложили метод вращающего момента (*Torque method*) для определения энергии МКА ( $E_{MKA}$ ) систем с одноосной симметрией. Авторы показали, что МКА может быть оценена через угловую производную полной энергии от угла между осью намагниченности и нормалью к плоскости намагниченности. Преимущество метода заключается в вычислении МКА при единственной заданной ориентации намагниченности и выполнению интегрирования зоны Бриллюэна по  $k$ -сетке для одной поверхности Ферми, отвечающей выбранной магнитной ориентации.

При помощи данного метода в рамках подхода полного потенциала линеаризованных присоединённых плоских волн (*Full-Potential Linearized Augmented Planewave Method — FLAPW*) были исследованы магнитные анизотропные свойства сплавов Fe-Ga [2–4]. Добавка немагнитного Ga в  $\alpha$ -Fe приводит к уникальной зависимости констант тетрагональной магнитострикции от концентрации Ga при комнатной температуре. Для композиций с  $x = 19$  и 27 ат. % существуют два пика магнитострикции насыщения  $\lambda_{100}$ :  $395 \times 10^{-6}$  и  $350 \times 10^{-6}$  [5], которые связаны с наличием в сплавах фаз с объёмно-центрированными кубическими (ОЦК) решётками различной степени упорядочения A2, B2, D0<sub>3</sub> [6; 7]. В работах [2–4] показано, что B2-подобная структура играет решающую роль в положительной магнитострикции сплавов Fe<sub>75</sub>Ga<sub>25</sub>, в то время как фаза D0<sub>3</sub> вносит отрицательный вклад в МКА. Также было показано, что для усиления магнитострикции можно заменить Ga атомами Zn или Ge или заменить Fe  $5d$ -элементами Pt/Ir. В результате константы тетрагональной магнитострикции могут достигать значений  $+943 \times 10^{-6}$  и  $-3553 \times 10^{-6}$  в модельных структурах Fe<sub>87.5</sub>Pt<sub>6.25</sub>Ga<sub>6.25</sub> и Fe<sub>75</sub>Pt<sub>6.25</sub>Ge<sub>18.75</sub>. Исследование влияния на МКА B2- и D0<sub>3</sub>-подобных кластеров сплавов Fe-Ga [8] было выполнено при помощи программного пакета VASP (*Vienna Ab initio Simulation Package*) [9] в рамках метода проекционных присоединённых волн (*Projector augmented wave method*) методом 168-атомных суперъячеек. В сплавах с  $x < 12$  ат. % наличие B2-подобных кластеров вносит отрицательный вклад в  $E_{MKA}$ , в то время как D0<sub>3</sub>-кластеры вносят положительный вклад и, соответственно, величина магнитострикции составляет  $-33 \times 10^{-6}$  и  $+45 \times 10^{-6}$ . В работе [10] показано влияние структур A2, D0<sub>3</sub> и L1<sub>2</sub> на величину магнитострикции. Исследования были выполнены при помощи метода проекционных присоединённых волн на 32-атомных суперъячейках. Магнитокристаллическая энергия рассчитывалась как разность между энергиями систем с ориентациями намагниченности вдоль направлений [001] и [111] от степени небольших тетрагональных искажений ( $c/a$ ) вдоль оси  $z$ . В структуре A2 зависимость  $E_{MKA}$  демонстрирует нелинейное поведение и в пределах  $c/a = 0.98$ –1.02 убывает. В фазе D0<sub>3</sub> при  $x \leq 15$  ат. % Ga  $E_{MKA}$  линейно уменьшается и меняет свой знак с положительного на отрицательный с увеличением искажения  $c/a$ , и демонстрирует нелинейное поведение в диапазоне  $18 \leq x \leq 21$  ат. %. Структура L1<sub>2</sub> вносит положительный вклад в МКА, меняя свой знак с отрицательного на положительный при  $c/a > 1$ . Воспроизвести экспериментальную зависимость  $\lambda_{001}(x)$  сплавов Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub> ( $0 \leq x \leq 21$  ат. %) удалось Вангу (Wang) с соавторами [11] при помощи температурного моделирования ОЦК решётки в рамках метода *ab initio* молекулярной динамики.

Авторы упомянутых выше статей не указывают количество времени и мощность затраченных вычислительных ресурсов. Однако самосогласованные расчёты энергии системы  $E_{001}$  ( $c/a$ ), выполненные в работе [10] для композиции  $\text{Fe}_{78.125}\text{Ga}_{21.875}$  в фазе  $\text{D}0_3$  (32-атомная суперъячейка), занимают до 96 часов процессорного времени. Полученные в результате вычислений данные занимают порядка 300 Гб дискового пространства. В то же время, как показывают исследования, расчёты, выполненные методом вращающего момента, значительно менее затратны. В данной работе рассчитана магнитокристаллическая анизотропия кубических структур A2, B2 и  $\text{D}0_3$  сплавов  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  ( $15 \leq x \leq 25$  ат.%) при помощи метода магнитного вращающего момента в рамках формализма функций Грина с учётом электронной структуры в релятивистском приближении.

## 1. Детали и методология вычислений

Исследования магнитных свойств кристаллических структур сплавов Fe-Ga выполнено с помощью *ab initio* пакета SPR-KKR (*A spin polarized relativistic Korringa — Kohn — Rostoker code*) [12]. В основе метода лежит формализм гриновских функций Корринги — Кона — Ростокера, позволяющий использовать теорию рассеяния. Особенностью интерпретации схемы Корринги — Кона — Ростокера в рамках теории многократного рассеяния является разделение задачи на однократное и многократное рассеяние. Вследствие интегрирования комплексной энергии метод является весьма эффективным в вычислительном плане и позволяет решать задачи, связанные с добавкой примесей в кристалл или на его поверхность, без использования дополнительной геометрии, связанной с формированием конечного кластера или суперъячейки. Для формирования нестехиометрических композиций сплавов  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  применено приближение когерентного потенциала (*Coherent potential approximation — CPA*). Порог сходимости самосогласованных функций составил  $10^{-7}$  Ридберг. Обменно-корреляционный потенциал рассматривался в рамках приближения обобщённого градиента (*General gradient approximation — GGA*) в формулировке Пердью, Бурка и Эрнзерхофа (*Perdew, Burke and Ernzerhof — PBE*) — GGA-PBE [13].

На первом этапе проводились расчёты основного состояния кристаллических структур. В результате геометрической оптимизации расчётной ячейки были определены равновесные параметры решётки. Расчёты проводились для ОЦК-структур сплавов  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  ( $15 \leq x \leq 25$  ат.%) : A2 (структура типа  $\alpha\text{-Fe}$ ), B2 (структура типа CsCl) и  $\text{D}0_3$  (структура типа  $\text{BiF}_3$ ). Для самосогласованных циклов оператор рассеивающего пути вычислялся с помощью интегрирования зоны Бриллюэна на  $k$ -сетке размером  $25 \times 25 \times 25$ . На втором этапе проведены расчёты анизотропных свойств исходных кубических структур. Для равновесных состояний, полученных при релаксации решётки в исследуемом диапазоне, созданы системы с геометрией, оптимизированной вдоль оси  $z$  с сохранением постоянного объёма ( $\varepsilon_x = \varepsilon_y = 1/2\varepsilon_z$ ). Параметр искажения изменялся в диапазоне  $-3 \leq \varepsilon \leq 3$  % с шагом 1 %. В табл. 1 представлены группы симметрии и позиции Уайкова, на основании которых моделировались кубические структуры и структуры с тетрагональной деформацией исследуемых фаз. Для каждой конфигурации искажённых структур вычислены значения полной энергии  $E_{\text{полн}}$  при намагничённости в направлении оси  $z$  ( $[001]$ ). На основании полученной зависимости  $E_{\text{полн}}(\varepsilon)$  определялись значения модулей упругости  $C'$  из следующего соотношения [11]:

$$C' = \frac{1}{3V} \frac{d^2 E_{\text{полн}}}{d\varepsilon^2},$$

Таблица 1

Группы симметрии, а также позиции Уайкова для кубической структуры и структуры с тетрагональной деформацией, соответствующих A2, B2 и D0<sub>3</sub> фазам

Кубическая структура		Атомы	Структура с тетрагональной деформацией	
Группа симметрии	Позиции Уайкова		Группа симметрии	Позиции Уайкова
A2				
$Im\bar{3}m$ (№ 229)	2a: 0; 0; 0	Fe,Ga	$Immm$ (№ 71)	2a: 0; 0; 0
B2				
$Pm\bar{3}m$ (№ 221)	1b: 0.5; 0.5; 0.5 1a: 0; 0; 0	Fe,Ga Fe	$Pmmm$ (№ 47)	1h: 0.5; 0.5; 0.5 1a: 0; 0; 0
D0 <sub>3</sub>				
$Fm\bar{3}m$ (№ 225)	4a: 0; 0; 0 4b: 0.5; 0.5; 0.5 8c: 0.25; 0.25; 0.25	Fe,Ga Fe Fe	$Fmmm$ (№ 69)	4a: 0; 0; 0 4b: 0; 0; 0.5 8f: 0.25; 0.25; 0.25

где  $V$  — объём расчётной ячейки.

Расчёт энергии магнитокристаллической анизотропии проводился двумя способами. Первый — при помощи метода магнитного вращающего момента [12], встроенного в программный пакет SPR-KKR, а второй — путём вычисления разности энергий с ориентацией спинов вдоль направлений [001] и [111]:  $E_{MKA} = E_{[111]} - E_{[001]}$ . Для расчёта разности энергий дополнительно проведены вычисления полной энергии при направлении намагниченности вдоль оси [111].

Для расчёта энергии МКА методом магнитного вращающего момента использовались потенциалы, полученные в результате самосогласованных расчётов  $E_{\text{полн}}$  при намагниченности в направлении оси  $z$ .

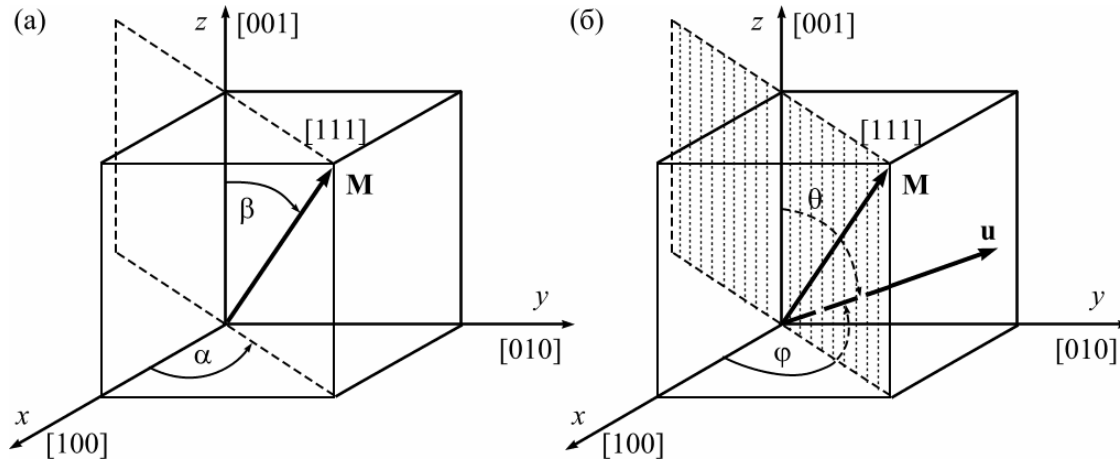


Рис. 1. Геометрия вычислений магнитного вращающего момента

Суть метода магнитного вращающего момента заключается в следующем: на магнитные моменты системы  $\mathbf{m}_i$ , расположенные в  $i$ -атомной позиции, с единичным вектором  $\hat{n}_i = \mathbf{m}_i / |\mathbf{m}_i|$  в направлении намагниченности  $\mathbf{M}$  (рис. 1 (а)) действует магнитный вращающий момент  $\mathbf{T}_i^{(\hat{n}_i)} = -dE(\hat{n}_k / d\hat{n}_i \times \hat{n}_i)$ , здесь  $E(\hat{n}_k)$  — полная энергия системы. Задав вектор  $\mathbf{u}$  перпендикулярно плоскости, в которой происходит изменение намагниченности системы, и определив углы между направлениями намагниченности  $\theta$ ,  $\varphi$  и вектором  $\hat{u}$  (рис. 1 (б)), магнитный вращающий момент можно представить как угловую производную от полной энергии системы:

$$T_{\hat{u}}(\theta, \varphi) = -\frac{\partial E(\mathbf{M}(\theta, \varphi))}{\partial \theta}, \quad T_{\theta}(\theta, \varphi) = -\frac{\partial E(\mathbf{M}(\theta, \varphi))}{\partial \theta}, \quad T_{\varphi}(\theta, \varphi) = -\frac{\partial E(\mathbf{M}(\theta, \varphi))}{\partial \varphi},$$

где  $T_\theta(\theta, \varphi)$  и  $T_\varphi(\theta, \varphi)$  — компоненты  $T_{\hat{u}}(\theta, \varphi)$ .

Непосредственно константы тетрагональной магнитострикции  $\lambda_{001}$  вычислены с помощью следующего выражения [11]:

$$\lambda_{001} = \frac{2dE_{MKA}/d\varepsilon}{3d^2E_{\text{полн}}/d\varepsilon^2} = -\frac{b_1}{3C'}, \quad -b_1 = \frac{2}{3V} \frac{dE_{MKA}}{d\varepsilon},$$

где  $-b_1$  — магнитоупругая постоянная.

## 2. Результаты вычислений и обсуждение

На первом этапе вычислений были проведены самосогласованные расчёты основного состояния кристаллических структур A2, B2 и D0<sub>3</sub> сплавов Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub> (15 ≤ x ≤ 25 ат.%). Композиционная область рассмотрения каждой из кубических фаз была определена в соответствии с экспериментальными фазовыми диаграммами [14; 15]. Для области концентраций Ga 15 ≤ x ≤ 25 ат.% характерно одновременное существование фаз D0<sub>3</sub> и A2. B2-подобная структура на фазовых диаграммах указана в диапазоне от x > 21 ат.%. В табл. 2 представлены рассчитанные равновесные параметры a<sub>0</sub> сплавов Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub>. Экспериментальные данные приведены из [16].

Таблица 2

Равновесные параметры a<sub>0</sub> (a<sub>0</sub>/2 для D0<sub>3</sub>) (Å) кубических структур A2, B2 и D0<sub>3</sub> сплавов Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub> (15 ≤ x ≤ 25 ат.%)

x	15	18	19	20	21	22	23	24	25
A2	2.908	2.915	2.917	2.919	2.923	2.924	2.927	2.930	2.933
A2 [16]	2.895	2.900	—	2.905	—	—	—	—	—
B2	—	—	—	—	2.917	2.918	2.920	2.922	2.923
D0 <sub>3</sub>	2.902	2.904	2.905	2.904	2.904	2.905	2.905	2.906	2.909
D0 <sub>3</sub> [16]	—	—	—	2.900	—	—	2.902	—	2.905

Как можно видеть из табл. 2, равновесный параметр увеличивается с ростом концентрации атомов Ga в решётке. В случае упорядоченной структуры D0<sub>3</sub> и частично упорядоченной структуры B2 a<sub>0</sub> увеличивается, в целом, не более чем на 0.2%, в то время как для полностью разупорядоченной фазы A2 данное изменение в среднем составляет порядка 0.85%. Расчётные данные находятся в хорошем согласии с экспериментальными результатами.

На рис. 2 представлены концентрационные зависимости тетрагональных модулей упругости C' в сплавах Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub> для структур A2, B2 и D0<sub>3</sub>. Для сравнения на график нанесены экспериментальные данные [17] и теоретические данные, полученные при помощи программного пакета VASP [18] моделированием на 32-атомных суперъячейках. В работе [18] для расчёта C' были использованы тензоры деформации для изотропной, моноклинной и орторомбической симметрий. Как видно из рис. 2, модуль сдвига для каждой ОЦК решётки демонстрирует тенденцию к уменьшению с увеличением концентрации Ga до 25 ат.%, что согласуется с экспериментальными данными [17]. Такое поведение характерно для большинства металлов и сплавов из-за увеличения межатомных расстояний за счёт добавки атомов большего диаметра и уменьшения упругой энергии, вызванного увеличением параметра решётки. Данные, полученные для структур D0<sub>3</sub> и A2 в рамках двух пакетов, хорошо согласуются между собой, в то время как для структуры B2 величина C', рассчитанная с помощью пакета SPR-KKR, больше. Различие в расчётах, выполненных при помощи пакетов SPR-KKR и VASP для структуры симметрии

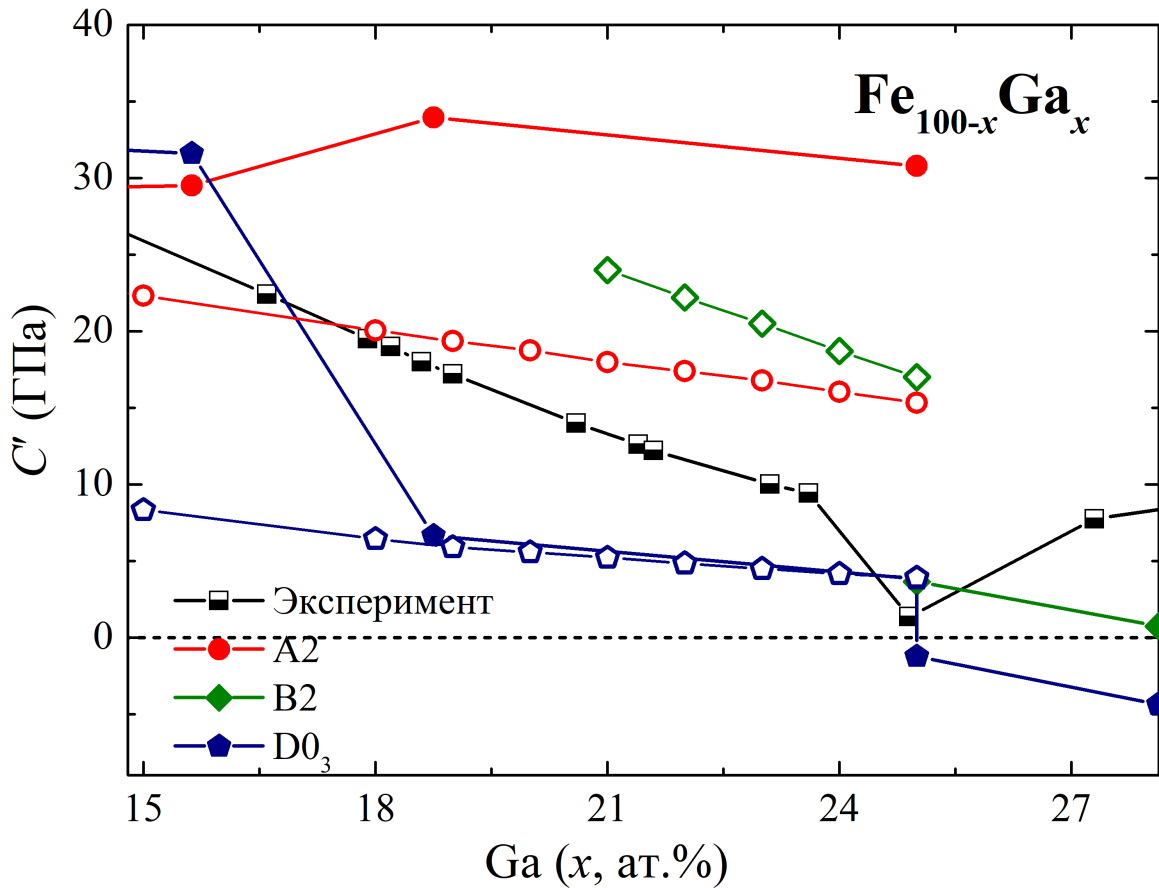


Рис. 2. Зависимость тетрагональных модулей упругости  $C'$  от концентрации Ga в сплавах  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  для структур A2, B2 и  $\text{D0}_3$ . Экспериментальные данные [17], приведённые на графике, получены при комнатной температуре. Теоретические данные, полученные при помощи пакета SPR-KKR, отмечены открытыми символами, полученные при помощи пакета VASP [18] — закрашенными символами

$Pm\bar{3}m$ , наблюдалось ранее при построении фазовых диаграмм [18; 19]. В работе [19] показано, что в диапазоне концентраций Ga  $23 \leq x \leq 27$  ат.% фаза  $\text{D0}_3$  является выгодной по отношению к  $\text{L1}_2$  фазе; на фазовой диаграмме, приведённой в работе [18], в данной области устойчивой является структура  $\text{L1}_2$ . Исследования методом нейтронной дифракции сплавов Fe-Ga [6] показали, что при непрерывном нагреве и последующем охлаждении в диапазоне температур от 20 до 900 °C наблюдаются следующие последовательности фазовых превращений:  $\text{D0}_3 \rightarrow \text{L1}_2$  (небольшое количество)  $\rightarrow \text{A2}$  ( $\text{B2}$ ) при нагревании,  $\text{A2}$  ( $\text{B2}$ )  $\rightarrow \text{D0}_3$  при охлаждении для сплавов  $\text{Fe}_{75.2}\text{Ga}_{24.8}$  и  $\text{D0}_3 \rightarrow \text{L1}_2 \rightarrow \text{D0}_{19} \rightarrow \text{A2}$  ( $\text{B2}$ ) при нагревании,  $\text{A2}$  ( $\text{B2}$ )  $\rightarrow \text{L1}_2$  при охлаждении в сплавах  $\text{Fe}_{72.6}\text{Ga}_{27.4}$ . Таким образом, можно утверждать, что диаграмма, полученная при помощи программного пакета SPR-KKR, в большей степени соответствует фазовой диаграмме метастабильных состояний в области Ga  $23 \leq x \leq 27$  ат.%.

Зависимость энергии магнитокристаллической анизотропии  $E_{MKA}$  от степени малых деформаций  $\varepsilon$  в сплавах  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  для кристаллических структур A2, B2 и  $\text{D0}_3$  представлена на рис. 3. Видно, что для структур A2 и B2 зависимость  $E_{MKA}(\varepsilon)$  практически линейная с положительным углом наклона. Зависимость  $E_{MKA}(\varepsilon)$  в фазе  $\text{D0}_3$  демонстрирует сложное нелинейное поведение. Из зависимостей, полученных с помощью метода вращающего момента, также видно, что в рассматриваемом диапазоне деформаций во всех фазах наблюдается смена лёгкой и трудной осей.

На рис. 4 представлена концентрационная зависимость  $\lambda_{001}$  для ОЦК структур A2, B2 и  $\text{D0}_3$  сплавов  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$ . Для сравнения на график нанесены экс-

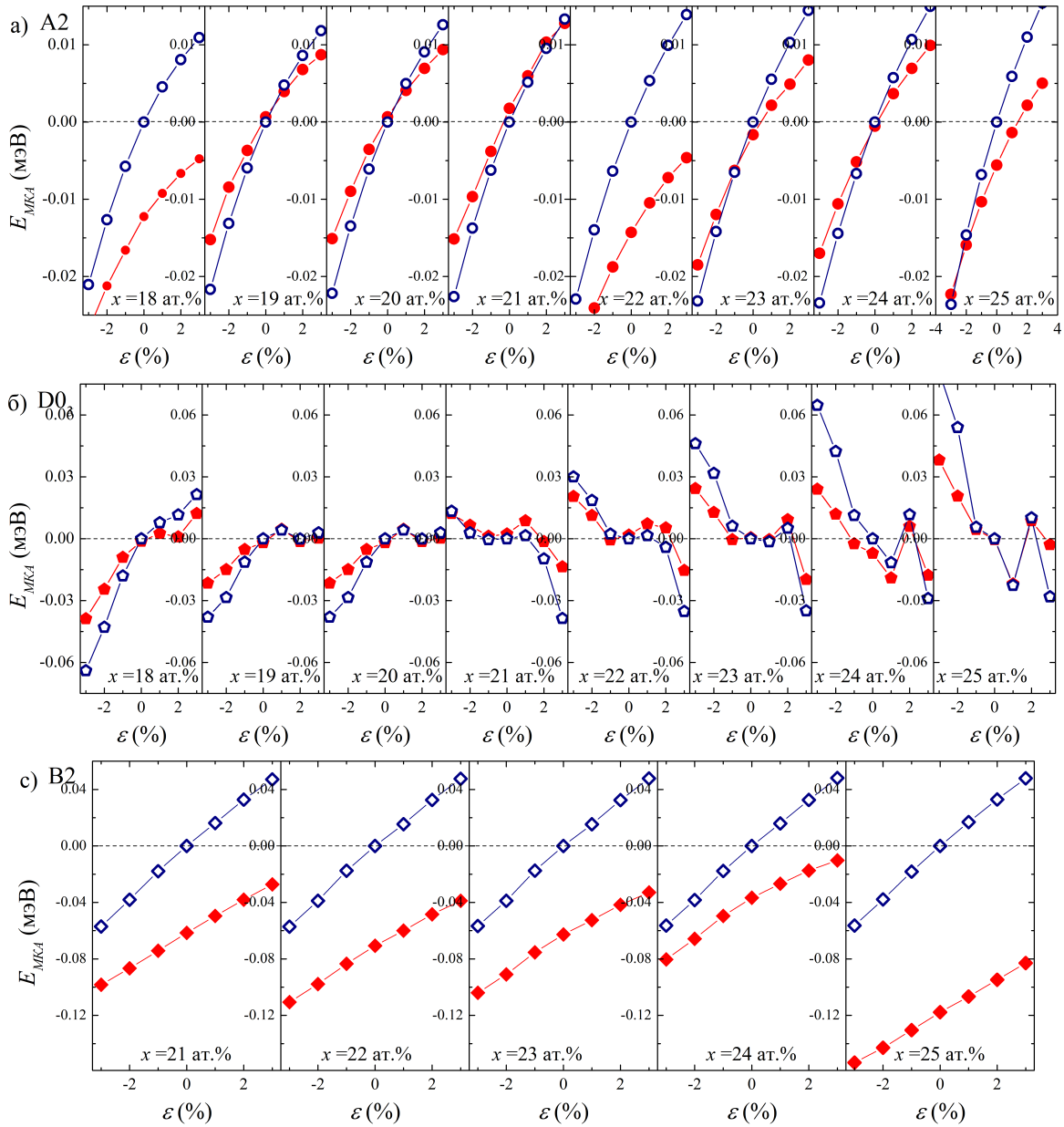


Рис. 3. Зависимость энергии магнитокристаллической анизотропии  $E_{MKA}$  от степени малых деформаций  $\varepsilon$  в сплавах  $Fe_{100-x}Ga_x$  для кристаллических структур: (а) А2, (б)  $D0_3$  и (в) В2.

Открытыми символами обозначена  $E_{MKA}$ , вычисленная при помощи метода магнитного вращающего момента, заполненные символы —  $E_{MKA} = E_{[111]} - E_{[001]}$

периментальные данные [17] и теоретические данные, полученные при помощи программного пакета VASP [10] моделированием на 32-атомных суперъячейках.

Результаты  $\lambda_{001}$  для структуры В2, полученные при помощи метода вращающего момента, хорошо согласуются с экспериментальными данными и демонстрируют тенденцию к дальнейшему увеличению с ростом концентрации Ga. Этот результат подтверждает предположение Ву (Wu) [2] о том, что структура В2 вносит основной вклад в величину тетрагональной магнитострикции. Для структуры А2  $\lambda_{001}$  линейно увеличивается с увеличением концентрации Ga. В случае структуры  $D0_3$  величина тетрагональной магнитострикции принимает отрицательные значения при концентрациях  $x \geq 21$  ат.%, что коррелирует с полученной зависимостью  $E_{MKA}(\varepsilon)$  (рис. 3). Схожие значения  $\lambda_{001}$  в рамках двух программных пакетов получены только для сплава  $Fe_{85}Ga_{15}$  в фазе  $D0_3$ .

Различие расчётных данных для структур А2 и  $D0_3$  с экспериментальными в диапазоне концентрации Ga  $19 \leq x < 25$  ат.% связано, по-видимому, с на-

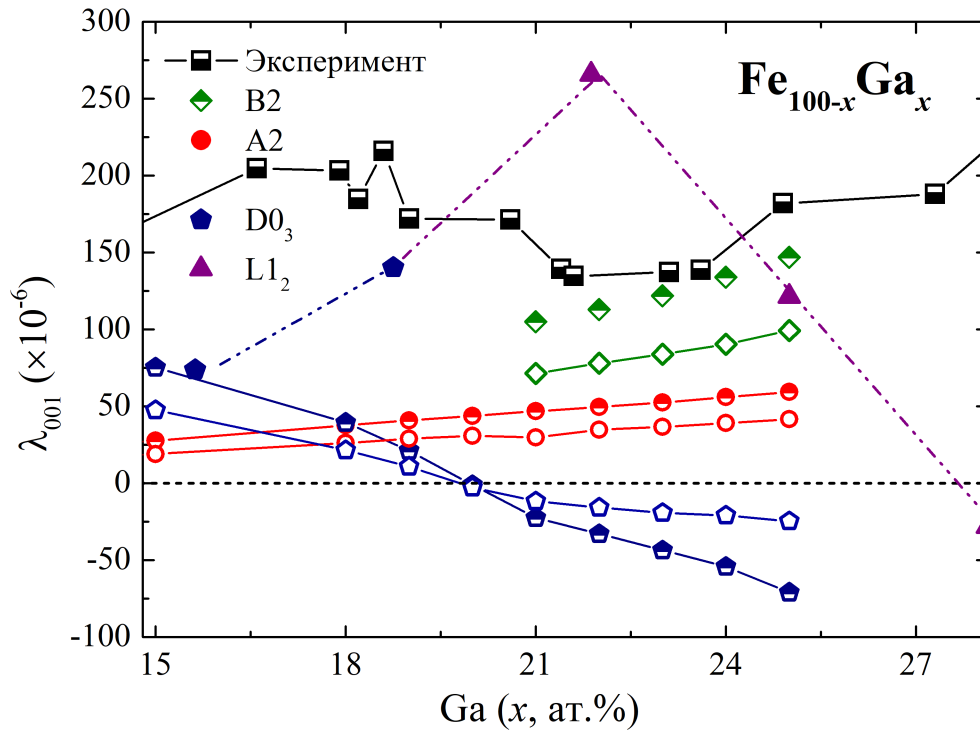


Рис. 4. Зависимость константы тетрагональной магнитоэластичности  $\lambda_{001}$  от концентрации Ga в сплавах  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  для кристаллических структур A2, B2 и  $\text{D0}_3$ . Открытые символы — расчёты  $\lambda_{001}$  из энергии МКА, рассчитанной как  $E_{\text{МКА}} = E_{[111]} - E_{[001]}$ , полузакрашенные символы — расчёты  $\lambda_{001}$  из  $E_{\text{МКА}}$ , полученной методом магнитного вращающего момента.

Экспериментальные данные [17], приведённые на графике, получены при комнатной температуре. Закрашенными символами обозначены теоретические данные, полученные при помощи пакета VASP [10]

личием в данном интервале областей смешанных фаз. Головин с соавторами [7] с помощью дифракции нейтронов *in situ* показал, что существенное влияние на механические и физические свойства сплавов Fe-Ga оказывают фазовые переходы первого и второго рода. В сплавах с содержанием Ga 19 ат.% обнаружено упорядочение A2 решётки по типу  $\text{D0}_3$  в случае медленного охлаждения образца в печи. Анализ микроструктуры сплавов в литом состоянии [20] позволил установить, что в образцах с содержанием  $15 \leq x \leq 19$  ат.% структура сплавов однородная и практически бездефектная. Начиная с  $\approx 20$  ат.% Ga в дифракционных спектрах наблюдаются сверхструктурные пики, соответствующие образованию кластеров с  $L_c \approx 30$  нм и упорядоченной  $\text{D0}_3$ -структуры в матрице A2. С ростом содержания до  $\approx 25$  ат.% Ga характерные размеры кластеров постепенно увеличиваются до  $L_c \approx 180$  нм, а при  $x > 26$  ат.% Ga структура опять становится однородной ( $L_c > 300$  нм), а  $\text{D0}_3$  постепенно заменяется B2-структурой. Всё это указывает на необходимость теоретического исследования смешанных структур.

## Заключение

В данной работе представлено исследование свойств сплавов  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  в кристаллических структурах A2, B2 и  $\text{D0}_3$ , выполненное при помощи *ab initio* пакета SPR-KKR. Вычислены равновесные параметры решётки и тетрагональные модули упругости. Полученные результаты для  $C'$  хорошо согласуются как с экспериментальными данными, так и с результатами, полученными при помощи программного пакета VASP. Методом магнитного вращающего момента получены зависимости энергии магнитокристаллической анизотропии от степени малых тетрагональных деформаций. Показано, что результаты сопоставимы с результатами вычисления

энергии магнитокристаллической анизотропии путём нахождения разности энергий, рассчитанных в направлении [001] и [111]. Этот факт позволяет сделать вывод о применимости данного метода для вычисления МКА в сплавах Fe-Ga. Преимущество метода магнитного вращающего момента заключается в получении значений  $E_{МКА}$  с помощью одного расчёта, в то время как при расчёте энергии МКА путём нахождения разности энергий между двумя направлениями намагниченности результат зависит от точности вычислений и может привести к существенной погрешности. Величина константы тетрагональной магнитострикции для структуры В2 хорошо согласуется с экспериментом.

## Список литературы

1. **Wang, X.** Torque method for the theoretical determination of magnetocrystalline anisotropy / X. Wang, R. Wu, D-s. Wang, A. J. Freeman // *Physical Review B*. — 1996. — Vol. 54. — P. 61–64.
2. **Wu, R.** Origin of large magnetostriction in Fe-Ga alloys / R. Wu // *Journal of Applied Physics*. — 2002. — Vol. 91, iss. 10. — P. 7358–7360.
3. **Zhang, Y. N.** Large magnetostriction in Fe-based alloys predicted by density functional theory / Y. N. Zhang, R. Q. Wu // *Physical Review B*. — 2010. — Vol. 82. — P. 224415.
4. **Zhang, Y.** Mechanism of large magnetostriction of Galfenol / Y. Zhang, R. Wu // *IEEE Transactions on Magnetics*. — 2011. — Vol. 47, iss. 10. — P. 4044–4049.
5. **Clark, A. E.** Extraordinary magnetoelasticity and lattice softening in bcc Fe-Ga alloys / A. E. Clark, K. B. Hathaway, M. Wun-Fogle, J. B. Restorff, T. A. Lograsso, V. M. Keppens, G. Petculescu, R. A. Taylor // *Journal of Applied Physics* — 2003. — Vol. 93, iss. 10. — P. 8621.
6. **Golovin, I. S.** Phase transition induced anelasticity in Fe-Ga alloys with 25 and 27% Ga / I. S. Golovin, A. M. Balagurov, I. A. Bobrikov, V. V. Palacheva, J. Cifre // *Journal of Alloys and Compounds*. — 2016. — Vol. 675. — P. 393–398.
7. **Golovin, I. S.** *In situ* studies of atomic ordering in Fe-19Ga type alloys // I. S. Golovin, A. M. Balagurov, W. C. Cheng, J. Cifre, D. A. Burdin, I. A. Bobrikov, V. V. Palacheva, N. Yu. Samoylova, E. N. Zanaeva // *Intermetallics*. — 2019. — Vol. 105. — P. 6–12.
8. **Wang, H.** *Ab initio* studies of the effect of nanoclusters on magnetostriction of  $Fe_{1-x}Ga_x$  alloys / H. Wang, Y. N. Zhang, T. Yang, Z. D. Zhang, L. Z. Sun, R. Q. Wu // *Applied Physics Letters*. — 2010. — Vol. 97, iss. 26. — P. 262505.
9. **Kresse, G.** *Ab-Initio* Molecular-Dynamics Simulation of the Liquid-Metal Amorphous-Semiconductor Transition in Germanium / G. Kresse, J. Hafner // *Physical Review B*. — 1994. — Vol. 49. — P. 14251–14269.
10. **Matyunina, M.** Magnetostriction of  $Fe_{100-x}Ga_x$  alloys from first principles calculations / M. Matyunina, M. Zagrebina, V. Sokolovskiy, V. Buchelnikov // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. — 2019. — Vol. 476. — P. 120–123.
11. **Wang, H.** Understanding strong magnetostriction in  $Fe_{100-x}Ga_x$  alloys / H. Wang, Y. N. Zhang, R. Q. Wu, L. Z. Sun, D. S. Xu, Z. D. Zhang // *Scientific Reports*. — 2013. — Vol. 3. — P. 3521.
12. **Ebert, H.** Calculating condensed matter properties using the KKR — Green's function method — recent developments and applications / H. Ebert, D. Ködderitzsch, J. Minár // *Reports on Progress in Physics*. — 2011. — Vol. 74, no. 9. — P. 096501.
13. **Perdew, J. P.** Generalized gradient approximation made simple / J. P. Perdew, K. Burke, M. Ernzerhof // *Physical Review Letters*. — 1996. — Vol. 77. — P. 3865–3868.
14. **Kubaschewski, O.** *Iron-Binary Phase Diagrams* / O. Kubaschewski. — Berlin : Springer-Verlag, 1982. — 185 p.

15. **Ikeda, O.** Phase equilibria and stability of ordered b.c.c. phases in the Fe-rich portion of the Fe–Ga system / O. Ikeda, R. Kainuma, I. Ohnuma // Journal of Alloys and Compounds. — 2002. — Vol. 347. — P. 198–205.
16. **Kawamiya, N.** Magnetic properties and Mössbauer investigations of Fe-Ga alloys / N. Kawamiya, K. Adachi, Y. Nakamura // Journal of the Physical Society of Japan. — 1972. — Vol. 33, no. 5. — P. 1318–1327.
17. **Restorff, J. B.** Tetragonal magnetostriction and magnetoelastic coupling in Fe-Al, Fe-Ga, Fe-Ge, Fe-Si, Fe-Ga-Al, and Fe-Ga-Ge alloys / J. B. Restorff, M. Wun-Fogle, K. B. Hathaway, A. E. Clark, T. A. Lograsso, G. Petculescu // Journal of Applied Physics. — 2012. — Vol. 111. — P. 023905.
18. **Matyunina, M. V.** Phase diagram of magnetostrictive Fe-Ga alloys: insights from theory and experiment / M. V. Matyunina, M. A. Zagrebin, V. V. Sokolovskiy, O. O. Pavlukhina, V. D. Buchelnikov, A. M. Balagurov, I. S. Golovin // Phase Transitions. — 2019. — Vol. 92, iss. 2. — P. 101–116.
19. **Матюнина, М. В.** Исследование свойств сплавов Fe-Ga из *ab initio* вычислений / М. В. Матюнина, М. А. Загребин, В. В. Соколовский, В. Д. Бучельников // Челяб. физ.-мат. журн. — 2017. — Т. 2, вып. 2. — С. 112–121.
20. **Balagurov, A. M.** Cluster-like structure of Fe-based alloys with enhanced magnetostriction / A. M. Balagurov, I. A. Bobrikov, S. V. Sumnikov, I. S. Golovin // Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques. — 2020. (*In press*).

Поступила в редакцию 10.05.2020

После переработки 25.05.2020

#### Сведения об авторах

**Матюнина Мария Викторовна**, преподаватель кафедры физики конденсированного состояния, Челябинский государственный университет, Челябинск, Россия; e-mail: matunins.fam@mail.ru.

**Загребин Михаил Александрович**, кандидат физико-математических наук, доцент, доцент кафедры радиофизики и электроники, Челябинский государственный университет, Челябинск, Россия; эксперт, Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС», Москва, Россия; e-mail: miczag@mail.ru.

**Соколовский Владимир Владимирович**, доктор физико-математических наук, профессор, профессор кафедры физики конденсированного состояния, Челябинский государственный университет, Челябинск, Россия; научный сотрудник, Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС», Москва, Россия; e-mail: vsokolovsky84@mail.ru.

**Бучельников Василий Дмитриевич**, доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой физики конденсированного состояния, Челябинский государственный университет, Челябинск, Россия; ведущий эксперт, Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС», Москва, Россия; e-mail: buche@csu.ru.

## MAGNETOCRYSTALLINE ANISOTROPY CALCULATION OF Fe-Ga ALLOYS BY THE MAGNETIC TORQUE METHOD

M.V. Matyunina<sup>1,a</sup>, M.A. Zagrebina<sup>1,2,b</sup>, V.V. Sokolovskiy<sup>1,2,c</sup>,  
V.D. Buchelnikov<sup>1,2,d</sup>

<sup>1</sup>*Chelyabinsk State University, Chelyabinsk, Russia*

<sup>2</sup>*National University of Science and Technology MISIS, Moscow*

<sup>a</sup>*matunins.fam@mail.ru*, <sup>b</sup>*miczag@mail.ru*, <sup>c</sup>*vsokolovsky84@mail.ru*, <sup>d</sup>*buche@csu.ru*

The magnetic properties of body-centered cubic structures of Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub> were investigated using the density functional theory. The dependence of the magnetocrystalline anisotropy (MCA) energy as a function of the tetragonal distortions was obtained by the help of the magnetic torque method implemented in the SPR-KKR software package. The dependence of MCA energy on the strain is linear and has a positive slope for a disordered A2 phase and a partially ordered B2 one. For ordered D0<sub>3</sub> structure, this dependence demonstrates a complex nonlinear behavior. The B2 phase makes the main contribution to tetragonal magnetostriction in the region of concentrations 21 ≤ x ≤ 25 at.%. The shear modulus obtained using the SPR-KKR software package decreases with increasing Ga concentration.

**Keywords:** *magnetic torque method, magnetocrystalline anisotropy energy, magnetostriction, shear modulus.*

## References

1. Wang X., Wu R., Wang D-s., Freeman A.J. Torque method for the theoretical determination of magnetocrystalline anisotropy. *Physical Review B*, 1996, vol. 54, pp. 61–64.
2. Wu R. Origin of large magnetostriction in Fe-Ga alloys. *Journal of Applied Physics*, 2002, vol. 91, iss. 10, pp. 7358–7360.
3. Zhang Y.N., Wu R.Q. Large magnetostriction in Fe-based alloys predicted by density functional theory. *Physical Review B*, 2010, vol. 82. p. 224415.
4. Zhang Y., Wu R. Mechanism of large magnetostriction of Galfenol. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2011, vol. 47, iss. 10, pp. 4044–4049.
5. Clark A.E., Hathaway K.B., Wun-Fogle M., Restorff J.B., Lograsso T.A., Keppens V.M., Petculescu G., Taylor R.A. Extraordinary magnetoelasticity and lattice softening in bcc Fe-Ga alloys. *Journal of Applied Physics*, 2003, vol. 93, iss. 10, p. 8621.
6. Golovin I.S., Balagurov A.M., Bobrikov I.A., Palacheva V.V., Cifre J. Phase transition induced anelasticity in Fe-Ga alloys with 25 and 27% Ga. *Journal of Alloys and Compounds*, 2016, vol. 675, pp. 393–398.
7. Golovin I.S., Balagurov A.M., Cheng W.C., Cifre J., Burdin D.A., Bobrikov I.A., Palacheva V.V., Samoylova N.Yu., Zanaeva E.N. *In situ* studies of atomic ordering in Fe-19Ga type alloy. *Intermetallic*, 2019, vol. 105, pp. 6–12.

The reported study was funded by RFBR, project no. 19-32-90138 (magnetocrystalline anisotropy energy and magnetostriction calculations), and RSF, project no. 18-12-00283 (elastic modulus calculations). M.A.Z. acknowledged Young Scientists Support Foundation of Chelyabinsk State University. M.A.Z., V.V.S and V.D.B. acknowledged NUST MISIS (project no. K2-2020-018).

8. **Wang H., Zhang Y.N., Yang T., Zhang Z.D., Sun L.Z., Wu R.Q.** *Ab initio* studies of the effect of nanoclusters on magnetostriction of Fe<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub> alloys. *Applied Physics Letters*, 2010, vol. 97, p. 262505.
9. **Kresse G., Hafner J.** Ab-Initio Molecular-Dynamics Simulation of the Liquid-Metal Amorphous-Semiconductor Transition in Germanium. *Physical Review B*, 1994, vol. 49, p. 14251.
10. **Matyunina M., Zagrebin M., Sokolovskiy V., Buchelnikov V.** Magnetostriction of Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub> alloys from first principles calculations. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2019, vol. 476, pp. 120–123.
11. **Wang H., Zhang Y.N., Wu R.Q., Sun L.Z., Xu D.S., Zhang Z.D.** Understanding strong magnetostriction in Fe<sub>100-x</sub>Ga<sub>x</sub> alloys. *Scientific Reports*, 2013, vol. 3, p. 3521.
12. **Ebert H., Ködderitzsch D., Minár J.** Calculating condensed matter properties using the KKR — Green’s function method — recent developments and applications. *Reports on Progress in Physics*, 2011, vol. 74, no. 9, p. 096501.
13. **Perdew J.P., Burke K., Ernzerhof M.** Generalized gradient approximation made simple. *Physical Review Letters*, 1996, vol. 77, pp. 3865–3868.
14. **Kubaschewski O.** *Iron-Binary Phase Diagrams*. Berlin, Springer-Verlag, 1982. 185 p.
15. **Ikeda O., Kainuma R., Ohnuma I.** Phase equilibria and stability of ordered b.c.c. phases in the Fe-rich portion of the Fe–Ga system. *Journal of Alloys and Compounds*, 2002, vol. 347, pp. 198–205.
16. **Kawamiya N., Adach K., Nakamura Y.** Magnetic properties and Mössbauer investigations of Fe-Ga alloys. *Journal of the Physical Society of Japan*, 1972, vol. 33, no. 5, pp. 1318–1327.
17. **Restorff J.B., Wun-Fogle M., Hathaway K.B., Clark A.E., Lograsso T.A., Petculescu G.** Tetragonal magnetostriction and magnetoelastic coupling in Fe-Al, Fe-Ga, Fe-Ge, Fe-Si, Fe-Ga-Al, and Fe-Ga-Ge alloys. *Journal of Applied Physics*, 2012, vol. 111, p. 023905.
18. **Matyunina M.V., Zagrebin M.A., Sokolovskiy V.V., Pavluchina O.O., Buchelnikov V.D., Balagurov A.M., Golovin I.S.** Phase diagram of magnetostrictive Fe-Ga alloys: insights from theory and experiment. *Phase Transitions*, 2019, vol. 92, iss. 2, pp. 101–116.
19. **Matyunina M.V., Zagrebin M.A., Sokolovskiy V.V., Buchelnikov V.D.** Investigations of properties of Fe-Ga alloys from *ab initio* calculations. *Chelyabinsk Physical and Mathematical Journal*, 2017, vol. 2, iss. 2, pp. 231–240.
20. **Balagurov A.M., Bobrikov I.A., Sumnikov S.V., Golovin I.S.** Cluster-like structure of Fe-based alloys with enhanced magnetostriction. *Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques*, 2020. (*In press*).

Accepted article received 10.05.2020

Corrections received 25.05.2020