

Нецентросимметричные кубические геликоидальные ферромагнетики $Mn_{1-y}Fe_ySi$ и $Fe_{1-x}Co_xSi$

© С.В. Григорьев, В.А. Дядькин, С.В. Малеев, D. Menzel*, J. Schoenes*,
D. Lamago**, E.B. Москвин, H. Eckerlebe***

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова РАН,
Гатчина, Ленинградская обл., Россия

* Technische Universität Braunschweig,
Braunschweig, Germany

** Laboratoire Léon Brillouin,
Saclay, France

*** GKSS Forschungszentrum,
Geesthacht, Germany

E-mail: dyadkin@lns.npi.spb.ru

Сравниваются две системы кубических нецентросимметричных геликоидальных магнетиков $Mn_{1-y}Fe_ySi$ ($y = 0, 0.06, 0.08, 0.1$) и $Fe_{1-x}Co_xSi$ ($x = 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3, 0.35, 0.5$). С помощью малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов получены концентрационные зависимости значений критических температур и магнитных полей, которые проанализированы в рамках модели Бака–Йенсена. Установлено, что из двух взаимодействий, играющих главную роль в этих системах, изотропного симметричного ферромагнитного обмена и изотропного антисимметричного взаимодействия Дзялошинского–Мория, первое определяет критическую температуру в $Mn_{1-y}Fe_ySi$, а второе — в $Fe_{1-x}Co_xSi$.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 07-02-01318-а).

Магнитные и транспортные свойства нецентросимметричного кубического магнетика $MnSi$ являются предметом активных исследований в течение последних сорока лет благодаря своим исключительным свойствам. Магнитная структура силицида марганца ($T_c = 29$ К) представляет собой левую геликоидальную спиновую структуру, имеющую волновой вектор $k = 0.36 \text{ nm}^{-1}$ (при $T = 4$ К) вдоль направлений $\langle 111 \rangle$ [1–3]. Как было показано [4–7], спиновые спирали являются результатом баланса между ферромагнитным обменным взаимодействием (ФОВ) и антисимметричным обменным взаимодействием Дзялошинского–Мория (ДМ), возникающего из-за отсутствия центра инверсии в кубическом кристалле с пространственной группой $P2_13$. В дополнение к этим двум изотропным взаимодействиям существует также слабое анизотропное обменное взаимодействие, которое фиксирует направление геликоида вдоль одной из кубических пространственных диагоналей [5].

Исследованная ранее магнитная структура соединения $MnSi$ [8,9] и схожей системы $Fe_{1-x}Co_xSi$ [10,11] была проанализирована в рамках теории [12], которая включает указанные выше взаимодействия. Эксперименты по нейтронной дифракции позволяют определить важные параметры подобных систем: волновой вектор \mathbf{k} , критическое магнитное поле, энергия которого превалирует над энергией кубической анизотропии H_{C1} , критическое магнитное поле перехода системы из геликоидальной фазы в ферромагнитную H_{C2} , а также поле H_{gap} , при котором на фазовой диаграмме магнитное поле — температура ($H-T$) появляется А-фаза (см. далее в тексте, подробное объяснение дано в [8,10]).

Автор [12] разработал микроскопическую теорию для кубических магнетиков без центра инверсии в магнит-

ном поле. Система находится в геликоидальном равновесии, если волновой вектор спирали [5]

$$k = S|D|/A. \quad (1)$$

Здесь D — константа взаимодействия Дзялошинского–Мория, A — жесткость спиновых волн (СВ) на расстояниях, много меньших периода спирали (т.е. данный параметр характеризует силу ФОВ), а S — средний спин на элементарную ячейку. Там же было показано, что данная система нестабильна относительно малого магнитного поля, приложенного в направлении, перпендикулярном \mathbf{k} , если дополнительно не постулировать энергетическую щель в спектре спиновых волн Δ , которая вызвана наличием в системе ДМ. Для таких систем всегда следует ожидать наличия положительной щели $\Delta^2 \sim (D^2/2A)^2$, которое объясняет существование на фазовой диаграмме А-фазы [8]. Необорот, существование А-фазы может рассматриваться как косвенное подтверждение наличия щели, предсказанной теорией [12].

Описанная теория [12] позволяет установить соответствие между полученными в эксперименте значениями полей H_{C1} , H_{C2} , H_{gap} и константой анизотропии F , СВ-жесткостью A , СВ-щелью Δ с помощью следующих выражений:

$$g\mu_B H_{C1} \simeq \frac{SFk^2}{2}, \quad (2)$$

$$g\mu_B H_{C2} = Ak^2, \quad (3)$$

$$\Delta \simeq \frac{g\mu_B H_{\text{gap}}}{\sqrt{2}}, \quad (4)$$

где g — фактор Ланде, а μ_B — магнетон Бора. Комбинируя эти уравнения с определением k (1), можно вычислить основные взаимодействия данной системы из

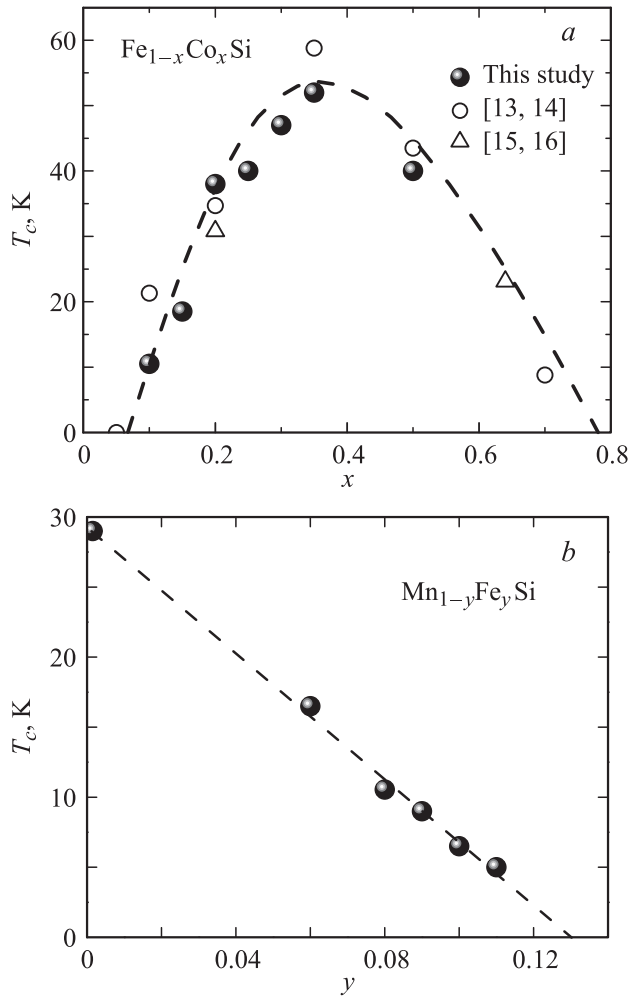


Рис. 1. Концентрационная зависимость критической температуры T_c для $Fe_{1-x}Co_xSi$ (a) и $Mn_{1-y}Fe_ySi$ (b).

критических полей (H_{C1} , H_{C2} , H_{gap}) и волнового вектора, измеряемых в дифракционном эксперименте.

Целью настоящей работы является количественная оценка и сравнение основных взаимодействий в системе $Fe_{1-x}Co_xSi$ и $MnSi$, легированном Fe. Монокристаллические образцы $Fe_{1-x}Co_xSi$ ($x = 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3, 0.35, 0.5$) и $Mn_{1-y}Fe_ySi$ ($y = 0, 0.06, 0.08, 0.1$) диаметром 30 мм и толщиной 3 мм были выращены методом Чохральского. Известно, что все образцы имеют одну и ту же пространственную группу $P2_13$ и кристаллическую мозаичность порядка 0.5° . Структура и однородность образцов подтверждены с помощью Лауэ-дифракции рентгеновских лучей.

Эксперименты по малоугловому рассеянию поляризованных нейтронов проводились на установке SANS-2 на исследовательском реакторе FRG-1 в GKSS (Гестахт, Германия). Поляризация падающего пучка нейтронов $P_0 = 0.93$ (поле порядка 1 мТ, ведущее поляризацию, направлено горизонтально), длина волны $\lambda = 0.58 \text{ nm}^{-1}$ ($\Delta\lambda/\lambda = 0.1$) и расходимость 2.5 mrad . Рассеянные нейтроны детектировались двухкоординатным позиционно-чувствительным детектором, содержа-

щим 256×256 ячеек. Дистанция детектор–образец выбиралась таким образом, чтобы интервал переданных импульсов q составлял от $1 \cdot 10^{-2}$ до 1 nm^{-1} . Магнитное поле в диапазоне от 0 до 800 мТ прикладывалось вдоль одной из осей $\langle 111 \rangle$ для $Mn_{1-y}Fe_ySi$ и вдоль $\langle 100 \rangle$ для $Fe_{1-x}Co_xSi$. Интенсивность рассеянных нейтронов измерялась в температурном интервале $0 \leq T \leq 60 \text{ K}$.

Дифракция нейтронов на геликоидальных спиновых структурах наблюдается при значении переданных импульсов $q = k$, когда обеспечивается выполнение брэгговского условия $2d \sin(\theta_B/2) = \lambda$, где $d = 2\pi/k$ — период спиновой спирали, θ_B — угол Брэгга. Очевидно, что если $d \sim 100 \text{ \AA}$, а $\lambda = 5.8 \text{ \AA}$, то все дифракционные пики

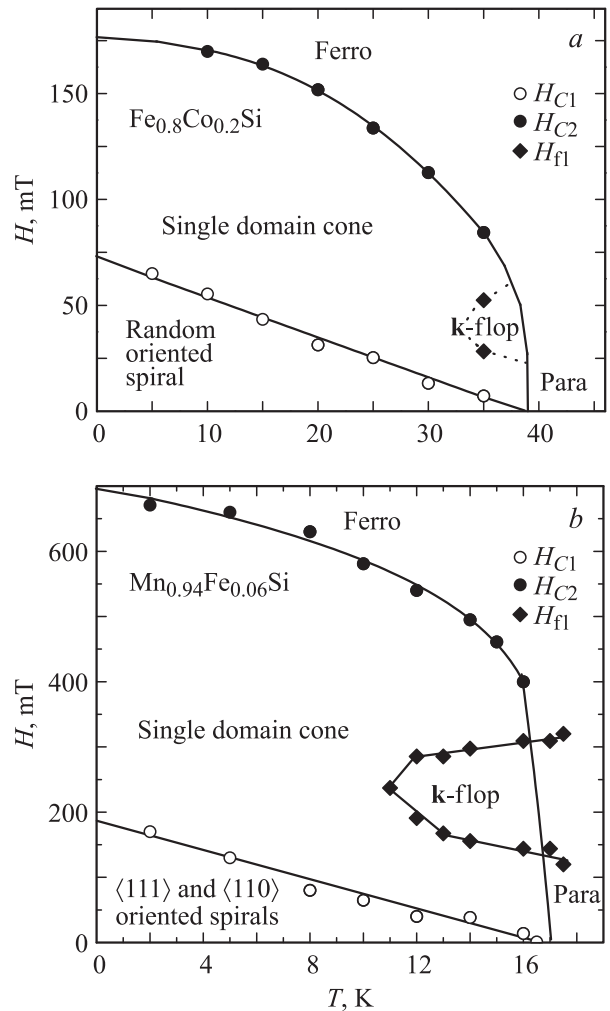


Рис. 2. Фазовые диаграммы для образцов $Fe_{0.8}Co_{0.2}Si$ (a) и $Mn_{0.94}Fe_{0.06}Si$ (b). Ниже критической температуры упорядочения система не реагирует на приложенное внешнее магнитное поле, если его величина меньше первого критического значения H_{C1} . В интервале $H_{C1} < H < H_{C2}$ спирали ориентируются вдоль направления магнитного поля и при этом становятся коническими. Выше H_{C2} образец становится ферромагнитным. H_{fl} — границы А-фазы (к-флоп перехода), в которой спирали поворачиваются из параллельного в перпендикулярное полю направление, при этом H_{gap} — верхняя граница А-фазы.

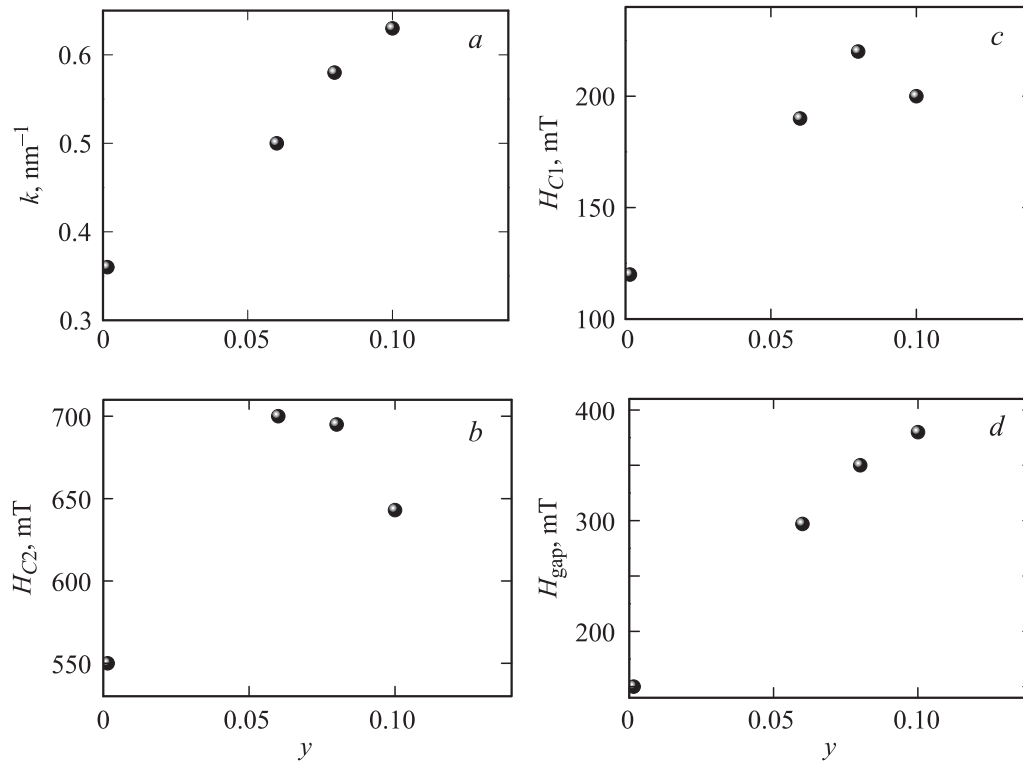


Рис. 3. Концентрационные зависимости k (a), H_{C2} (b), H_{C1} (c) и H_{gap} (d) для $Mn_{1-y}Fe_ySi$.

наблюдаются только в диапазоне малых углов. Критическая температура перехода из парамагнитного состояния в геликоидальное T_c определялась как температура, при которой исчезают брэгговские пики. Концентрационные зависимости T_c для $Fe_{1-x}Co_xSi$ и $Mn_{1-y}Fe_ySi$ приведены на рис. 1, a и b соответственно. Видно, что для $Mn_{1-y}Fe_ySi$ T_c линейно падает с концентрацией Fe и достигает нуля при $y \approx 0.13$. Для $Fe_{1-x}Co_xSi$ зависимость коренным образом иная: спиновое магнитное упорядочение наблюдается в интервале $x \in [0.05, 0.8]$ [13–16] и имеет максимальное значение при $x = 0.35$.

Эксперименты по малоугловому рассеянию нейтронов показывают, что спиральный волновой вектор \mathbf{k} для силицида марганца $MnSi$ направлен вдоль осей $\langle 111 \rangle$ [1–3,8,9], тем самым образуя четыре типа спиральных доменов. Однако с увеличением концентрации легирующей примеси Fe в $Mn_{0.94}Fe_{0.06}Si$ появляются дополнительные пики вдоль направлений $\langle 110 \rangle$. Дальнейшее легирование ведет ко все большему размытию дифракционных пиков, так что при $y = 0.1$ брэгговские пики превращаются в сферу рассеяния без выделения какого-либо направления. Магнитное упорядочение полностью пропадает при $y \approx 0.13$ [17,18]. Объяснить данное поведение можно, если предположить, что с увеличением концентрации железа кубическая анизотропия в системе уменьшается, что сначала приводит к появлению дополнительных типов доменов со спиральями, параллельными $\langle 110 \rangle$, а при высоких концентрациях Fe распределение направлений спиралей становится полностью изотропным.

Схожая ситуация наблюдается в $Fe_{1-x}Co_xSi$: при малых концентрациях Co ($x = 0.1, 0.15$) обнаруживается явная тенденция к упорядочению вдоль $\langle 100 \rangle$, однако уже начиная с $x = 0.2$ направление спирального волнового вектора \mathbf{k} может быть любым, а при $x = 0.5$ анизотропия исчезает полностью [10,11].

Поведение спиновой структуры в магнитном поле хорошо изучено и является однотипным для всех подобных соединений [8–11]. При приложении внешнего магнитного поля спиновая структура перестраивается, т.е. волновой вектор \mathbf{k} поворачивается вдоль направления магнитного поля и образец становится однодоменным. Данный процесс начинается с порогового значения поля H_{C1} , энергия которого преобладает над энергией кубической анизотропии. На дифракционной картине перестройка структуры выглядит как плавный переход нескольких брэгговских пиков в один с $\mathbf{q} = \mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$. В полях $H > H_{C1}$ спиновая структура переходит в коническую фазу, т.е. возникает компонента спина, параллельная полю, образуя конус. Угол между единичным спином и \mathbf{k} продолжает уменьшаться с увеличением поля вплоть до $H = H_{C2}$, где становится равным нулю, т.е. спиральная структура разрушается и образец переходит в ферромагнитную фазу. В картине рассеяния этот процесс сопровождается исчезновением малоугловых брэгговских пиков. Температурные зависимости критических полей H_{C1} и H_{C2} для образцов $Fe_{0.8}Co_{0.2}Si$ и $Mn_{0.94}Fe_{0.06}Si$ построены на $H-T$ -фазовых диаграммах (рис. 2).

Важной особенностью фазовых диаграмм является существование так называемой A-фазы (или к-флоп-пере-

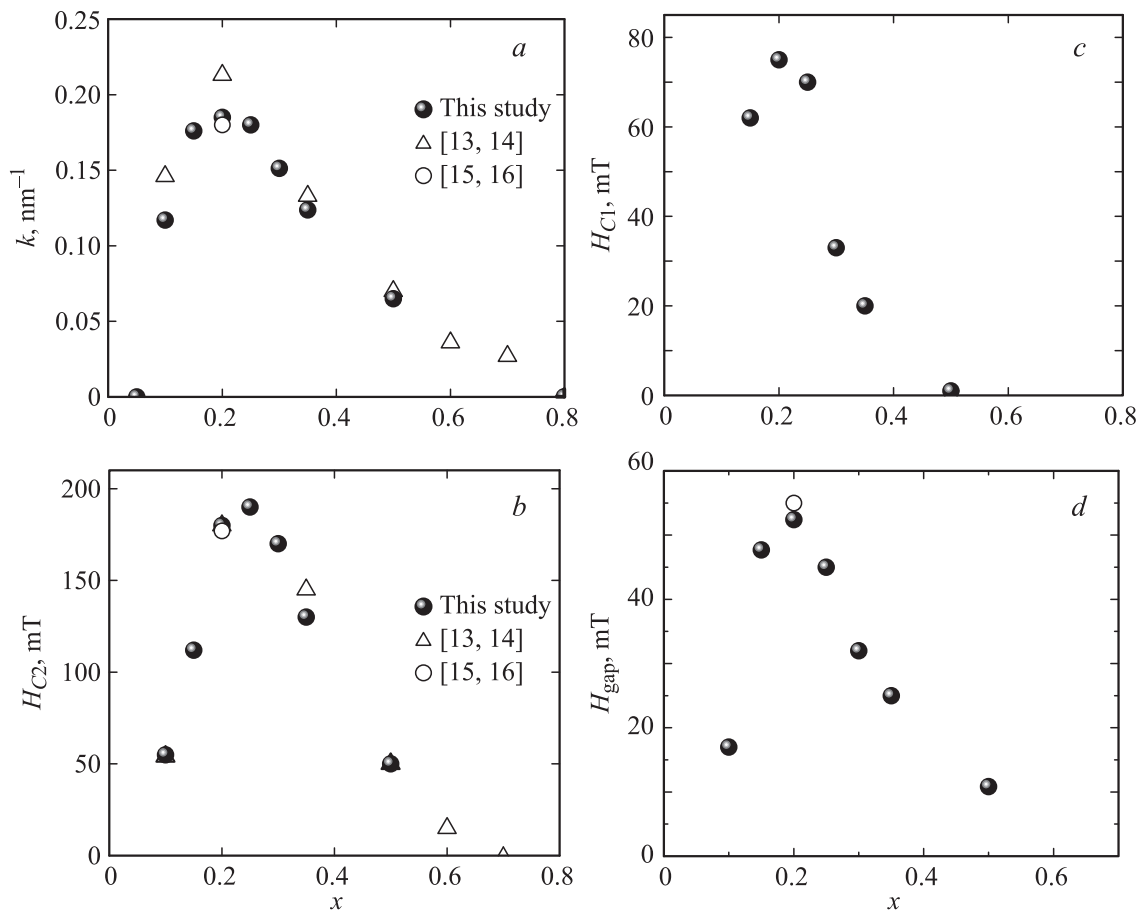


Рис. 4. То же, что на рис. 3, для $Fe_{1-x}Co_xSi$.

хода) вблизи T_c . В дифракционном эксперименте она выглядит как 90° скачок волнового вектора от $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$ к $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$. Это сопровождается уменьшением интенсивности при $\mathbf{q} = \mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$ и появлением новых брэгговских пиков с $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$. Значения поля H_{fl} , характеризующего границы \mathbf{k} -фlop-фазы, показаны на рис. 2. Верхняя полевая граница А-фазы обозначена H_{gap} [8,10].

Фазовые диаграммы, показанные на рис. 2, являются характерными для всех нецентросимметричных кубических гелимагнетиков. Схожесть фазовых диаграмм подразумевает, что все подобные системы управляются одним и тем же набором взаимодействий, которые в свою очередь определяют такие параметры, как критические поля H_{C1} , H_{C2} и H_{gap} , а также волновой вектор k (см. выражения (1)–(4)).

Концентрационные зависимости этих параметров для обеих систем изображены на рис. 3 и 4. Значения критических полей H_{C1} и H_{C2} берутся из экстраполяции температурной зависимости H_{C1} и H_{C2} при $T = 0$ К. Как видно из рис. 3, в $Mn_{1-y}Fe_ySi$ H_{C1} , H_{C2} и H_{gap} меняются значительно меньше, чем в $Fe_{1-x}Co_xSi$ (рис. 4, b–d).

Значения волнового вектора k изменяются с концентрацией достаточно сильно в обоих случаях. В $Mn_{1-y}Fe_ySi$ k возрастает линейно почти в 2 раза с 0.36 до 0.65 nm^{-1} (рис. 3), т.е. период спиновой

спирали d уменьшается с 200 до 100 \AA . В $Fe_{1-x}Co_xSi$ k является колоколообразной функцией концентрации кобальта x (рис. 4, a) и принимает минимальное значение $k = 0.025 \text{ nm}^{-1}$ при $x = 0.5$ ($d \approx 2500 \text{ \AA}$), а максимальное $k = 0.23 \text{ nm}^{-1}$ при $x = 0.3$ ($d \approx 270 \text{ \AA}$).

Используя теорию [12] и выражения (1), (3) и (4), можно вычислить параметры основных взаимодействий системы, такие как ферромагнитный обмен (характеризуемый жесткостью спиновых волн A), константу Дзялошинского D , константу анизотропии F и щель в спектре спиновых волн Δ . Полученные концентрационные зависимости для $Mn_{1-y}Fe_ySi$ и $Fe_{1-x}Co_xSi$ изображены на рис. 5 и 6 соответственно. Все зависимости нормированы на параметр ячейки a для получения размерности энергии.

Из рис. 5 видно, что в $Mn_{1-y}Fe_ySi$ энергия ФОВ линейно уменьшается с концентрацией Fe и при экстраполяции достигает нуля в районе $y \approx 0.15$. Энергия взаимодействия Дзялошинского–Мория также уменьшается с 9 до 6 meV , а величина щели Δ возрастает с 10 до $30 \mu\text{eV}$. Энергия анизотропии SF/a^2 , как и предполагалось выше, падает с ростом концентрации.

Совершенно иная ситуация наблюдается в $Fe_{1-x}Co_xSi$ (рис. 6). Видно, что ФОВ линейно растет с концентрацией, а D качественно повторяет ход k и H_{C2} .

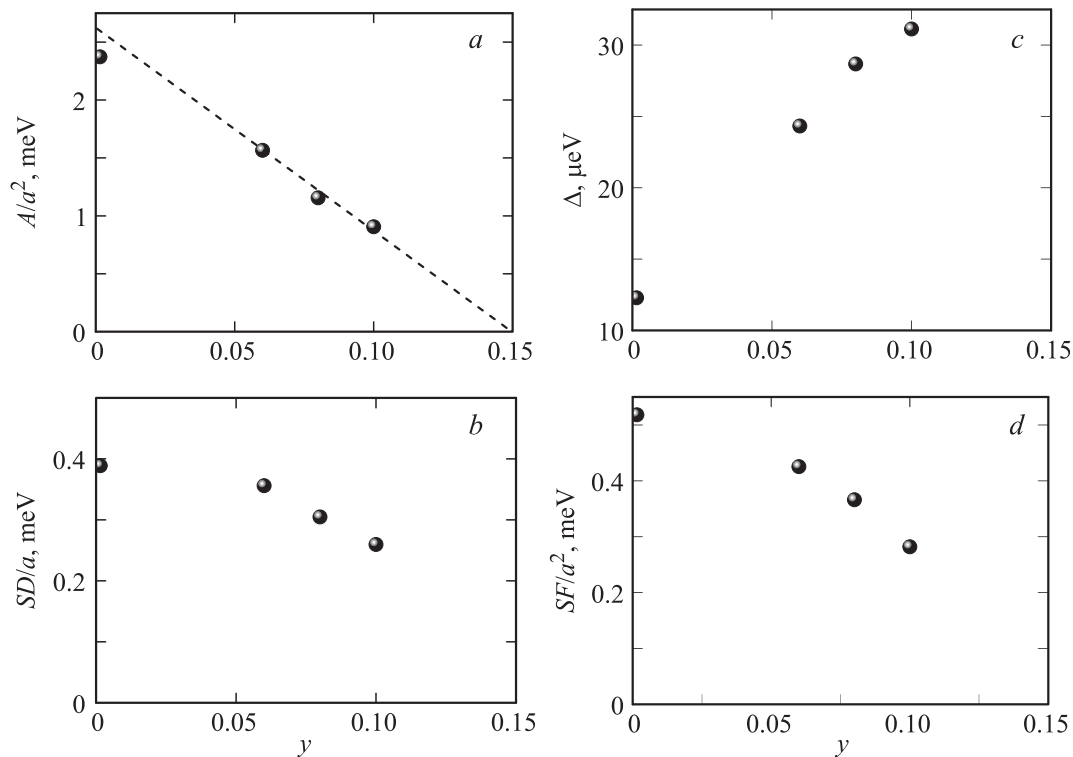


Рис. 5. Концентрационные зависимости основных взаимодействий в системе $\text{Mn}_{1-y}\text{Fe}_y\text{Si}$: a — жесткости спиновых волн A , b — константы Дзялошинского SD , c — спин-волновой щели Δ , d — константы анизотропии SF (S — средний спин на элементарную ячейку). Для удобства сравнения энергий этих взаимодействий все величины номированы на постоянную ячейки a .

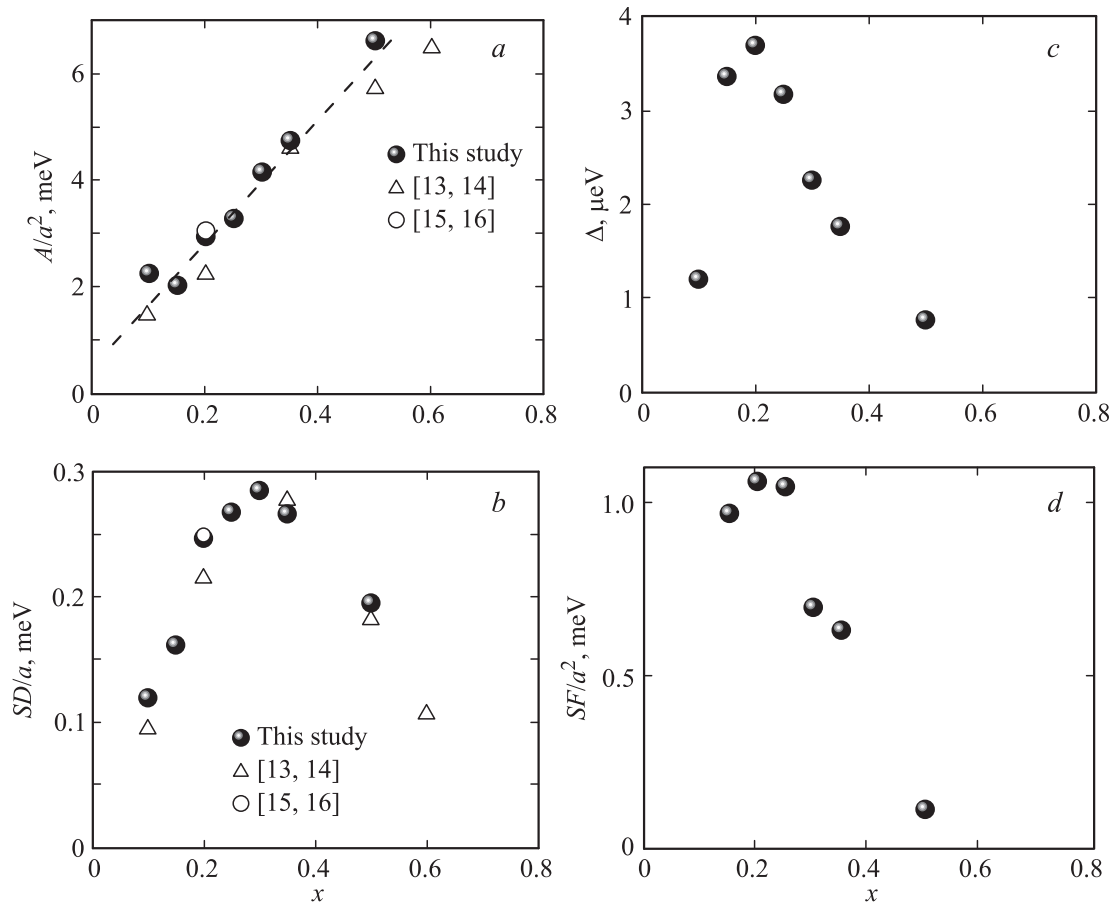


Рис. 6. То же, что на рис. 5, в системе $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$.

Величина щели Δ , как и D , имеет вид колоколообразной функции. Энергия анизотропии, как и в $Mn_{1-y}Fe_ySi$, падает, достигая нуля при $x = 0.5$.

Из сравнения концентрационных зависимостей принципиальных параметров (рис. 5, 6) и критических температур T_c (рис. 1, *a* и *b*) видно, что в $Mn_{1-y}Fe_ySi$ T_c повторяет ход A и довольно слабо соотносится с D . В то же время в $Fe_{1-x}Co_xSi$ T_c очевидным образом связана с D , так как A имеет линейную зависимость от x . Все это позволяет сделать вывод, что взаимодействием, определяющим критическую температуру в $Mn_{1-y}Fe_ySi$, является простой ферромагнитный обмен, а в $Fe_{1-x}Co_xSi$ — слабое взаимодействие Дзялошинского—Мория. Механизмы, лежащие в основе этого явления не совсем ясны. Однако можно предположить их возможную связь с тем фактом, что фактор Стонера, характеризующий величину вклада коллективизированных электронов в магнетизм, в $Fe_{1-x}Co_xSi$ больше, чем в $Mn_{1-y}Fe_ySi$. Данное предположение подкрепляется тем, что в $Fe_{1-x}Co_xSi$ наблюдаются положительное магнитосопротивление и аномальный эффект Холла в отличие от отрицательного магнитосопротивления в $Mn_{1-y}Fe_ySi$ и отсутствия аномального эффекта Холла [17,19]. Дальнейший анализ и сравнение магнитных и транспортных свойств данных геликоидальных ферромагнетиков в рамках теории зонного магнетизма должны выявить природу столь различного поведения таких схожих систем.

Список литературы

- [1] Y. Ishikawa, K. Tajima, D. Bloch, M. Roth. *Solid State Commun.* **19**, 525 (1976).
- [2] Y. Ishikawa, G. Shirane, J.A. Tarvin, M. Kohgi. *Phys. Rev. B* **16**, 4956 (1977).
- [3] G. Shirane, R. Cowley, C. Majkrzak, J.B. Sokoloff, B. Pagonis, C.H. Perry, Y. Ishikawa. *Phys. Rev. B* **28**, 6251 (1983).
- [4] И.Е. Дзялошинский. *ЖЭТФ* **46**, 1420 (1964).
- [5] P. Bak, M.H. Jensen. *J. Phys. C* **13**, L 881 (1980).
- [6] D. Nakamishi, A. Janase, A. Hasejawa, M. Kitaoka. *Solid State Commun.* **35**, 995 (1980).
- [7] M. Kataoka, O. Nakanishi. *J. Phys. Soc. Jpn.* **50**, 3888 (1981).
- [8] S.V. Grigoriev, S.V. Maleyev, A.I. Okorokov, Yu.O. Chetverikov, H. Eckerlebe. *Phys. Rev. B* **73**, 224 440 (2006).
- [9] S.V. Grigoriev, S.V. Maleyev, A.I. Okorokov, Yu.O. Chetverikov, P. Böni, R. Georgii, D. Lamago, H. Eckerlebe, K. Pranzas. *Phys. Rev. B* **74**, 214 414 (2006).
- [10] S.V. Grigoriev, V.A. Dyadkin, D. Menzel, J. Schoenes, Yu.O. Chetverikov, A.I. Okorokov, H. Eckerlebe, S.V. Maleyev. *Phys. Rev. B* **76**, 224 424 (2007).
- [11] S.V. Grigoriev, S.V. Maleyev, V.A. Dyadkin, D. Menzel, J. Schoenes, H. Eckerlebe. *Phys. Rev. B* **76**, 092 407 (2007).
- [12] S.V. Maleyev. *Phys. Rev. B* **73**, 174 402 (2006).
- [13] J. Beille, J. Voiron, M. Roth. *Solid State Commun.* **47**, 399 (1983).
- [14] J. Beille, J. Voiron, F. Towfiq, M. Roth, Z.Y. Zhang. *J. Phys. F* **11**, 2153 (1981).
- [15] K. Ishimoto, H. Yamaguchi, J. Suzuki, M. Arai, M. Furusaka, Y. Endoh. *J. Magn. Magn. Mater.* **90–91**, 163 (1990).
- [16] K. Ishimoto, H. Yamaguchi, J. Suzuli, M. Arai, M. Furusaka, Y. Endoh. *Physica B* **213–214**, 381 (1995).

- [17] N. Manyala, Y. Sidis, J.F. DiTusa, G. Aeppli, D.P. Young, Z. Fisk. *Nature (London)* **404**, 581 (2000).
- [18] Y. Nishihara, S. Waki, S. Ogawa. *Phys. Rev. B* **30**, 32 (1984).
- [19] N. Manyala, Y. Sidis, J.F. DiTusa, G. Aeppli, D.P. Young, Z. Fisk. *Nature Mater.* **3**, 255 (2004).