

Кинетические свойства антиферромагнитных сплавов ГЦК-железа

© Г.А. Такзей, И.И. Сыч, С.В. Черепов

Институт магнетизма Академии наук Украины,
252680 Киев, Украина

(Поступила в Редакцию 19 июня 1997 г.)

Исследованы электросопротивление и термоэдс ГЦК-сплавов $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$ в области концентраций $44 \leq x \leq 70 \text{ at.}\%$. Показано, что при низких температурах для них характерно наличие минимумов на температурных зависимостях электросопротивления. Возникновение указанных аномалий связывается с возникновением щели в энергетическом спектре электронов проводимости в результате возникновения в сплавах дальнего или ближнего антиферромагнитного порядка. Изучено влияние магнитного поля на магнитные состояния, возникающие во фрустрированных антиферромагнитных сплавах. Построена $H-T$ магнитная фазовая диаграмма.

В ряде работ [1,2] показано, что при изменении концентрации легирующих элементов в ГЦК-сплавах FeNiMn и FeNiCr различных квазибинарных разрезов происходит концентрационный фазовый переход от состояния с дальним ферромагнитным (ФМ) к состоянию с дальним антиферромагнитным (АФМ) порядком. Существенно, что вблизи соответствующих критических концентраций смены типа магнитного порядка в указанных сплавах возникает состояние спинового стекла (СС).

Представляет интерес выяснить, каким образом возникновение перечисленных выше магнитных фаз и состояний в указанных сплавах может отразиться на их кинетических свойствах. Особый интерес представляют ГЦК-сплавы $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$, имеющие богатую магнитную фазовую диаграмму (рис. 1) [3]. Именно для этих сплавов в области больших концентраций железа впервые обнаружен и изучен возвратный температурный переход АФМ-СС для фрустрированного гейзенберговского магнетика [3,4].

В настоящей работе исследованы электросопротивление и термоэдс сплавов $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$ в широкой области составов и с привлечением данных магнитных исследований показано, что аномальное поведение их кинетических свойств обусловлено возникновением энергетической щели в электронном спектре сплавов при их АФМ упорядочении. Кроме того, изучение кинетических свойств позволило уточнить магнитную структуру сплавов в состоянии СС, что в ряде случаев невозможно при использовании других методов.

1. Методика эксперимента

Исследовали образцы сплавов $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80}\text{Cr}_{20}$ в виде проволок диаметром 0.2–0.3 мм и длиной 40 мм. Перед измерениями образцы закаливали от 1400 К в воду. Рентгенографический и дилатометрический анализы показали, что при охлаждении до температуры 4.2 К все сплавы находились в исходном состоянии с ГЦК-решеткой.

Электросопротивление измеряли на постоянном токе по стандартной четырехпроводной схеме в двух направлениях тока, что позволило избежать влияния паразитных эдс на результаты измерений.

Температурные зависимости термоэдс сплавов измеряли в интервале температур 9–200 К относительно свинца чистотой 99.999.

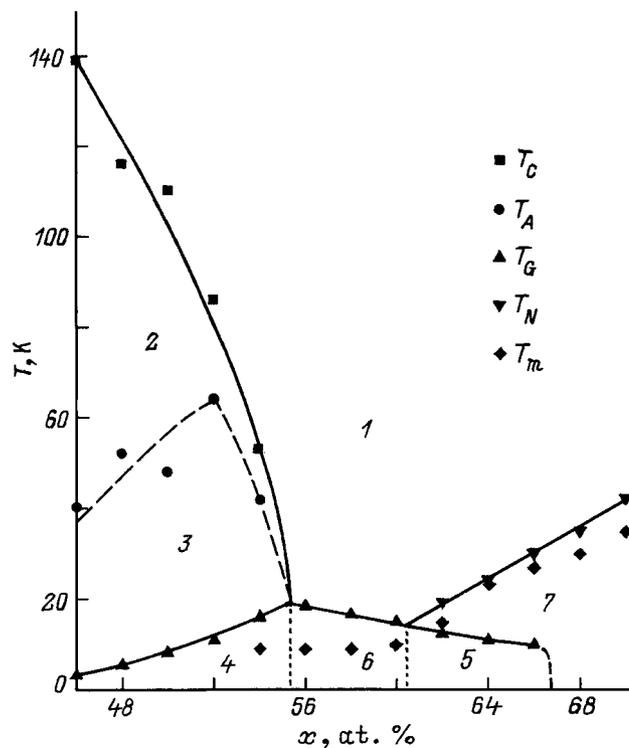


Рис. 1. Магнитная фазовая диаграмма сплавов $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$. 1 — парамагнитная область, 2 — ферромагнитная область, 3 — область сосуществования дальнего ферромагнитного порядка с локальными искажениями коллинеарной спиновой структуры, 4 и 5 — области возвратного спинового стекла, 6 — область спинового стекла, 7 — антиферромагнитная область. T_C , T_N , T_G , T_m — температуры Кюри, Нееля, замораживания спинового стекла, минимума электросопротивления, T_A — температура возникновения неколлинеарного ферромагнитного состояния.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

1) Э л е к т р о с о п р о т и в л е н и е. На рис. 2 представлены типичные температурные зависимости приведенного электросопротивления $\Delta R(T)/R(5\text{ K}) = [R(T) - R(5\text{ K})]/R(5\text{ K})$ сплавов $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$, испытывающих в соответствии с фазовой диаграммой (рис. 1) магнитные превращения "парамагнетик-ферромагнетик" (ПМ-ФМ) ($x = 44\text{ at.}\%$), ПМ-ФМ-СС ($x = 54\text{ at.}\%$), ПМ-СС ($x = 60\text{ at.}\%$), ПМ-АФМ-СС ($x = 64$ и $66\text{ at.}\%$) и ПМ-АФМ ($x = 70\text{ at.}\%$). Из приведенных данных видно, что для сплавов в АФМ области составов ($x \geq 62$) весьма характерны минимумы электросопротивления, температура T_m и относительная "глубина" $\Delta R(T_m)/R(5\text{ K})$ которых тем больше, чем больше x . Из рис. 1 и 2 также следует, что для АФМ сплавов $T_m < T_N$, где T_N — температура Нееля.

Для сплавов с $54 \leq x \leq 60$, т.е. в спин-стекольной области составов, также характерны минимумы электросопротивления. Однако в отличие от АФМ сплавов в СС данная аномалия гораздо слабее. Следует также отметить, что в противоположность данным работы [5] нами не отмечено никаких аномалий электросопротивления ни вблизи температуры T_G замораживания СС, ни в окрестности T_N . Последнее находится в согласии с результатами многих авторов, изучавших электросопротивление СС, а также фрустрированных ФМ и АФМ [6].

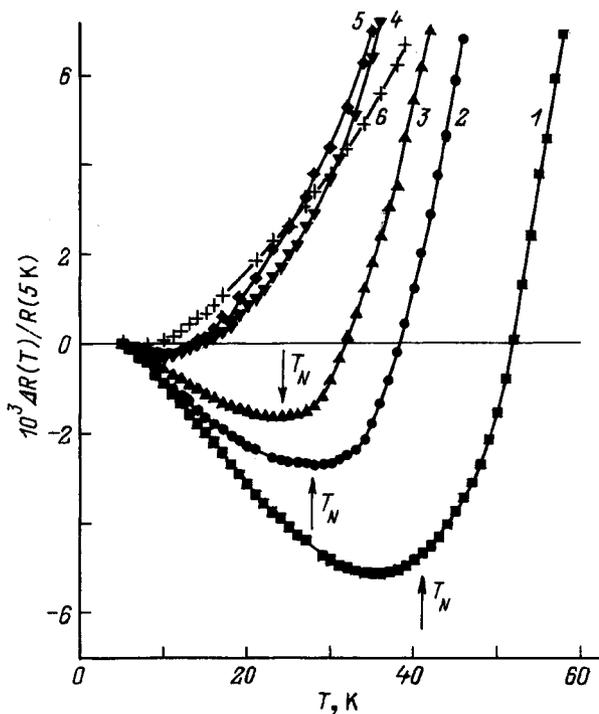


Рис. 2. Температурные зависимости относительного электросопротивления сплавов $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$. $x = 70$ (1), 66 (2), 64 (3), 60 (4), 54 (5), 44 (6).

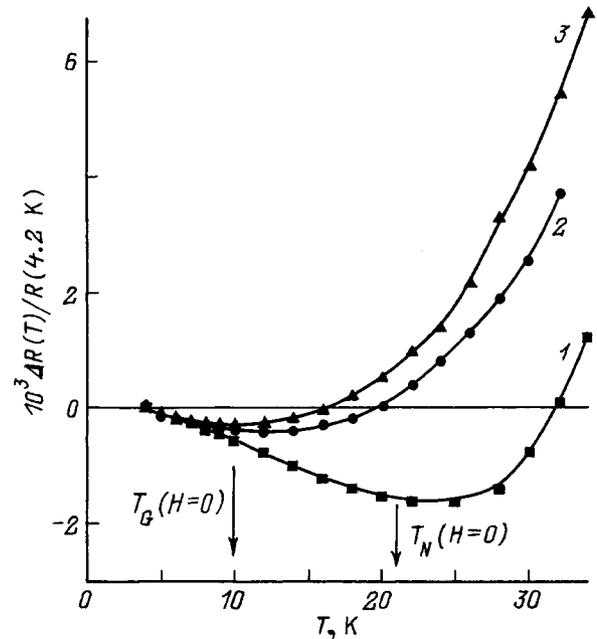


Рис. 3. Температурная зависимость относительного электросопротивления антиферромагнитного сплава $\text{Fe}_{64}\text{Ni}_{16}\text{Cr}_{20}$ в магнитных полях различной напряженности. H (kOe): 1 — 0, 2 — 30, 3 — 50.

Рассмотрим теперь вопрос о влиянии магнитного поля на обсуждаемую аномалию электросопротивления. Как видно из рис. 3 и 4, на которых приведены примеры соответствующих зависимостей для АФМ сплава и СС, достаточно сильное магнитное поле, не подавляя аномалию $\Delta R(T)/R(4.2\text{ K})$ полностью, сдвигает ее в область более низких температур. Полученный результат однозначно свидетельствует о магнитной природе наблюдаемых аномалий.

Перейдем теперь к интерпретации полученных результатов, которая должна ответить по крайней мере на три вопроса. Во-первых, почему минимумы сопротивления наиболее ярко проявляются для АФМ сплавов? Во-вторых, в чем причина возникновения минимумов сопротивления в СС $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$? Наконец, в-третьих, каков механизм частичного подавления минимума сопротивления магнитным полем?

Прежде всего отметим, что описанные выше аномалии в виде минимумов на температурных зависимостях сопротивления наблюдались и в других сплавах ГЦК-железа (FeNiCr [5,7-9], $\text{Fe}_{65}(\text{Ni}_{1-x}\text{Mn}_x)_{35}$ [10], $(\text{Fe}_{0.65}\text{Ni}_{0.35})_{1-x}\text{Mn}_x$ [11,12]) в области концентраций, примыкающих к критической концентрации возникновения дальнего АФМ порядка, и связывались авторами указанных работ с различными механизмами рассеяния электронов проводимости, которые, к сожалению, не могут описать всю совокупность экспериментальных данных. Следует подчеркнуть, что в магнитном отношении все перечисленные выше сплавы имеют одну и ту же

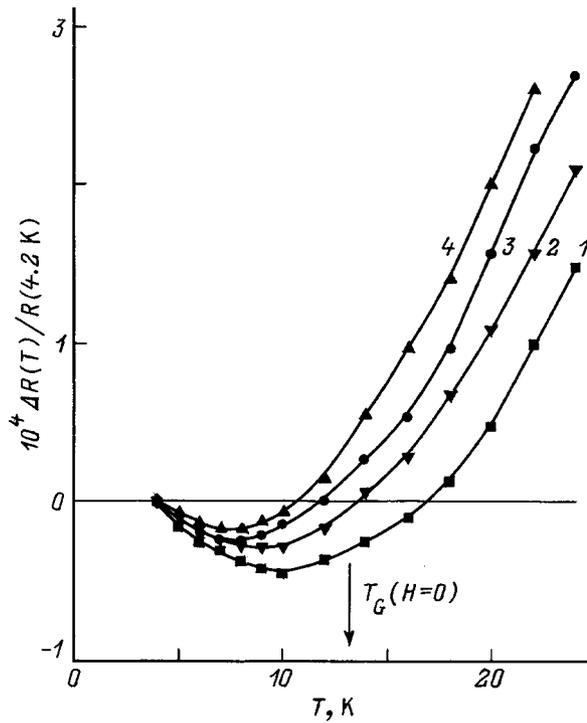


Рис. 4. Температурная зависимость относительного электропроводности спин-стекольного сплава $\text{Fe}_{60}\text{Ni}_{20}\text{Cr}_{20}$ в магнитных полях различной напряженности. H (кОе): 1 — 0, 2 — 5, 3 — 17, 4 — 40.

природу. Поэтому причины аномального поведения их электропроводности должны быть одними и теми же.

Удельное сопротивление ρ интересующих нас сплавов при температурах ниже T_N и T_G можно представить в виде

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_{PH} + \rho_{EE} + \rho_{SW} + \rho_{SD} + \rho_{EG}, \quad (1)$$

где ρ_0 — остаточное сопротивление, не зависящее от температуры, ρ_{PH} , ρ_{EE} , ρ_{SW} — вклады, обусловленные электрон-фононным, электрон-электронным рассеянием и рассеянием на спиновых волнах, ρ_{SD} — вклад, связанный с рассеянием электронов на хаотически замороженных спинах в состоянии СС, ρ_{EG} — слагаемое, обусловленное возникновением щели в энергетическом спектре носителей.

Из-за сравнительно большого остаточного сопротивления ($\rho_0 \approx 65 \div 70 \mu\Omega \cdot \text{cm}$) сплавов $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$ суммарный вклад слагаемых ρ_{PH} , ρ_{EE} и ρ_{SW} в общее сопротивление, по-видимому, невелик. К тому же, поскольку их величины не возрастают с понижением температуры [13], они не могут приводить к возникновению минимумов на температурных зависимостях электропроводности обсуждаемых сплавов (рис. 2–4). Не может быть ответственным за формирование аномалий электропроводности в интересующих нас сплавах и слагаемое ρ_{SD} . Действительно, ниже температуры T_G замедления СС в классических спин-стекольных системах

магнитный вклад в удельное сопротивление уменьшается при понижении температуры [6]. В то же время в СС $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$ с $x = 20$ (рис. 4) наблюдается противоположная картина. Кроме того, как видно из рис. 1, концентрационная зависимость $T_m(x)$ температуры минимума электропроводности очень хорошо коррелирует с $T_N(x)$, чего не наблюдается для температуры T_G . Все сказанное дает основание считать, что аномальное поведение электропроводности сплавов связано с возникновением в них АФМ упорядочения. Точнее говоря, можно ожидать, что при таком типе упорядочения ниже температуры Нееля T_N в спектре электронов проводимости возникает энергетическая щель, которая и обуславливает полупроводниковый характер проводимости сплавов при низких температурах.

Данный вывод подтверждается расчетами энергетического спектра носителей в атомно упорядочивающихся [14] и АФМ [15–17] металлических сплавах. Основным результатом указанных расчетов сводится к тому, что, как при атомном, так и при АФМ упорядочении ниже температуры упорядочения в центре полосы проводимости возможно возникновение щели запрещенных энергий. При АФМ упорядочении ширина щели пропорциональна относительной намагниченности подрешеток АФМ [15]. Если уровень Ферми в ПМ состоянии находится в центре полосы проводимости, то при $T < T_N$ может возникнуть полупроводниковая проводимость металла. Однако, как указано в [16], из-за сложной поверхности Ферми ГЦК-сплавов железа щель возникает лишь в некоторых направлениях обратной решетки. Отсюда следует, что в "щелевой" проводимости принимают участие не все носители, ибо в противном случае при $T < T_N$ наблюдался бы переход "металл-диэлектрик". Данный вывод подтверждается результатами, приведенными на рис. 2, из которых следует, что наибольший эффект возрастания электропроводности при температурах $T < T_m$ не превышает $\sim 0.5\%$. Другими словами, сравнительно слабое возрастание электропроводности при температурах ниже T_m может быть связано с температурными изменениями концентрации электронов, принимающих участие в "щелевой" проводимости, доля которых может составлять незначительную часть всех электронов системы.

Таким образом, возвращаясь к формуле (1), можно констатировать, что основной вклад в температурную зависимость электропроводности исследованных сплавов вносят слагаемые ρ_{PH} и ρ_{EG} , причем первое из них уменьшается, а второе возрастает при понижении температуры.

Несмотря на отсутствие дальнего АФМ порядка в СС $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$, ($54 < x \leq 60$) наличие минимума на температурной зависимости их электропроводности (рис. 2, 4) можно связать с присутствием в соответствующих сплавах АФМ корреляций конечного размера (ближнего АФМ порядка). Такие корреляции обусловлены локальными флуктуациями состава, в пределах

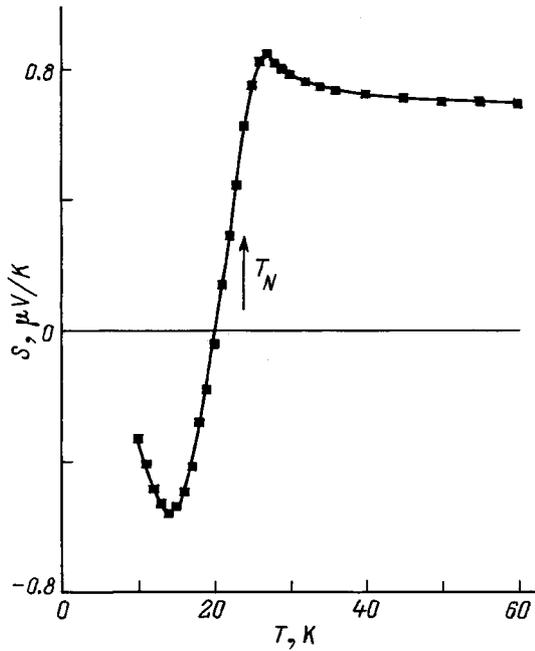


Рис. 5. Температурная зависимость термоэдс сплава $\text{Fe}_{64}\text{Ni}_{16}\text{Cr}_{20}$.

которых атом железа окружен только атомами железа [18]. В соответствии с результатами расчетов [14,17] локальное АФМ упорядочение также может приводить к возникновению энергетической щели тем меньшей, чем меньше средний размер АФМ корреляций. В сплавах $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$, для которых $x \ll 55$, т.е. в ФМ области составов (рис. 1), образование АФМ корреляций значительных размеров маловероятно. Поэтому для таких сплавов, например, для сплава с $x = 44$, не должно наблюдаться "щелевой" проводимости, что подтверждается экспериментальными данными рис. 2.

Обсуждение вопроса о влиянии внешнего магнитного поля на наблюдаемые аномалии электросопротивления будет проведено в третьем разделе настоящей работы, а сейчас рассмотрим температурные зависимости термоэдс АФМ сплавов $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$.

2) Т е р м о э д с. Как известно, термоэдс является самым чувствительным к электронной структуре металлов электронным свойством. Следовательно, можно ожидать, что перестройка электронной структуры сплавов $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$ в результате АФМ упорядочения должна проявиться на их термоэдс. На рис. 5 в качестве примера приведена температурная зависимость термоэдс S сплава $\text{Fe}_x\text{Ni}_{80-x}\text{Cr}_{20}$ с $x = 64$. Из приведенных данных видно, что вблизи температуры Нееля T_N термоэдс испытывает резкую аномалию и даже изменяет знак. Интерпретация такого рода экспериментов связана со значительными трудностями, поскольку требует знания деталей электронной структуры сплавов. Тем не менее, исходя из простейших соображений, попытаемся обсу-

дить приведенный выше результат. Согласно [13],

$$S = \frac{\pi^2}{3} \frac{k^2 T}{e} \left[\frac{\partial \ln \sigma(E)}{\partial E} \right]_{E=E_F}$$

$$= \frac{\pi^2}{3} \frac{k^2 T}{e} \left[\frac{\partial \ln \Lambda}{\partial E} + \frac{\partial \ln \Sigma}{\partial E} \right]_{E=E_F}, \quad (2)$$

где e — заряд электрона, E_F — энергия Ферми, σ — проводимость, Λ — длина свободного пробега электронов, Σ — площадь поверхности Ферми. Используя приведенное соотношение, пренебрегая температурной зависимостью Λ , можно дать качественное описание температурной зависимости термоэдс. Действительно, как указано в [16], при возникновении АФМ порядка в ГЦК сплавах железа из-за образования энергетической щели часть поверхности Ферми сокращается. Это приводит к тому, что второе слагаемое в формуле (2) становится отрицательным и при температурах меньших T_N , где возникает щель, термоэдс может изменить знак. Именно это и происходит в действительности (рис. 5).

3) $H-T$ -ф а з о в а я д и а г р а м м а. Выясним теперь, как в рамках изложенной модели можно объяснить влияние магнитного поля на наблюдаемые аномалии электросопротивления в АФМ сплавах (рис. 3). Очевидно, для полного подавления упомянутых аномалий необходимы магнитные поля,

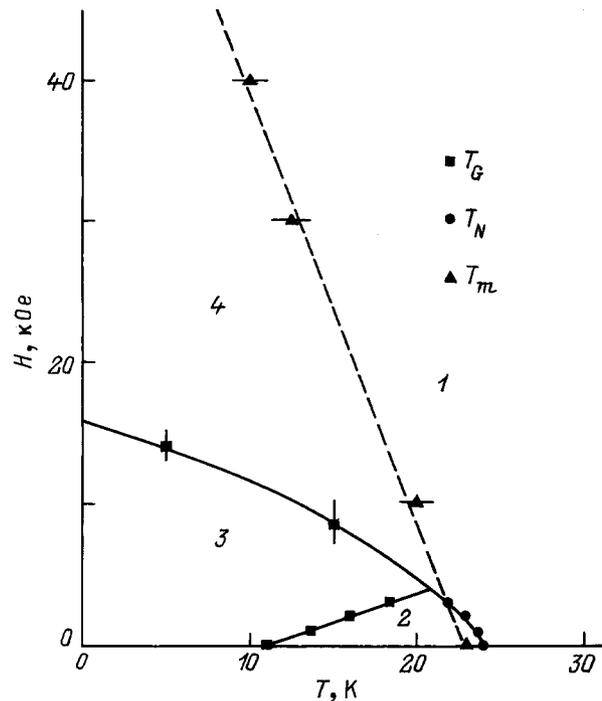


Рис. 6. $H-T$ -магнитная фазовая диаграмма сплава $\text{Fe}_{64}\text{Ni}_{16}\text{Cr}_{20}$. 1 — парамагнитная, 2 — антиферромагнитная, 3 — спин-стекольная области, 4 — область сосуществования парамагнетизма и ближнего антиферромагнитного порядка. T_N — температура Нееля, T_G — замораживания спинового стекла [3,4], T_m — минимума электросопротивления (настоящая работа).

способные разрушить в сплавах АФМ порядок. Из рис. 6, на котором приведена магнитная фазовая $H-T$ диаграмма сплава $Fe_xNi_{80-x}Cr_{20}$ ($x = 64$) [3,4], видно, что наложение на образец сравнительно небольшого магнитного поля $H \approx 17$ кОе приводит к подавлению в нем дальнего АФМ порядка. Другими словами, области 1 и 4 на магнитной фазовой диаграмме (рис. 6) соответствуют ПМ состоянию сплава. В то же время, между состояниями 1 и 4 существует существенное различие. Как видно из рис. 3, магнитное поле $H = 50$ кОе не подавляет полностью минимум электросопротивления в этом сплаве, так же и в СС $Fe_{60}Ni_{40}Cr_{20}$ (рис. 4). В соответствии со сказанным выше это означает, что в отличие от чисто ПМ области 1, где отсутствуют сколько-нибудь значительные спиновые корреляции, и области 2, где присутствует дальний АФМ порядок, в области 4 в сплаве существует ближний АФМ порядок. В этом смысле между состоянием сплава $Fe_{64}Ni_{16}Cr_{20}$ в области 3 и 4 на рис. 6 и состоянием сплава $Fe_{60}Ni_{20}Cr_{20}$ в области 6 на рис. 1 существует формальное сходство, заключающееся в том, что во всех перечисленных случаях в сплавах отсутствует дальний АФМ порядок, но присутствуют АФМ корреляции конечного радиуса. В то же время принципиальное отличие состоит в том, что такие корреляции в области 4 на рис. 6 существуют при наличии достаточно сильного магнитного поля в ПМ матрице сплава, а в состоянии СС (область 6 на рис. 1) или возвратного СС (область 3 на рис. 6) они сосуществуют с системой замороженных спинов.

Таким образом, экспериментальные результаты, приведенные в настоящей работе, и их анализ позволяют сделать вывод о том, что для ГЦК-сплавов $Fe_xNi_{80-x}Cr_{20}$ аномалии электросопротивления в виде минимумов на его температурной зависимости обусловлены возникновением щели в энергетическом спектре электронов проводимости при возникновении в сплавах как дальнего, так и ближнего АФМ порядка. Такой подход позволил понять аномальное поведение термоэдс сплавов вблизи температуры Нееля, причиной частичного подавления аномалий электросопротивления магнитным полем как для АФМ сплавов, так и для СС, дал возможность для АФМ сплавов, помещенных в достаточно сильное магнитное поле, впервые зафиксировать наличие АФМ корреляций в парамагнитном состоянии.

Изложенные выше представления, по-видимому, применимы для объяснения причин аномального электросопротивления обширного класса АФМ и СС на основе сплавов $3d$ -переходных металлов. Помимо изученных в настоящей работе сплавов к ним можно отнести сплавы $FeNiMn$ [10–12], $CoMn$ и $FeCoMn$ [19], $FeMnAl$ [20] и др.

Благодарим В.Ф. Лося и С.П. Репецкого за полезные обсуждения.

Список литературы

- [1] А.З. Меньшиков, Г.А. Такзей, А.Е. Теплых. ФММ **54**, 465 (1982); А.К. Majumdar, P. von Blanckenhagen. Phys. Rev. **B29**, 4079 (1984).
- [2] A.Z. Men'shikov, P. Burlet, A. Chamberod et al. Solid State Commun. **39**, 1093 (1981); M. Shiga, T. Satake, Y. Wada et al. J. Magn. Magn. Mater. **51**, 123 (1985); A. Wulfes, Ch. Bottger, J. Hesse et al. J. Magn. Magn. Mater. **104–107**, 2069 (1992).
- [3] Г.А. Такзей, А.М. Костышин, И.И. Сыч. Письма в ЖЭТФ **43**, 425 (1986); Г.А. Такзей, А.М. Костышин, И.И. Сыч. ФТТ **29**, 2434 (1987).
- [4] G.A. Takzei, A.B. Surzhenko, I.I. Sych et al. Magn. Magn. Mater. **118**, 77 (1993).
- [5] В.И. Печерская, Д.Н. Большуткин, И.Я. Ильичев. ФММ **50**, 300 (1980).
- [6] С.У. Hyang. J. Magn. Magn. Mater. **51**, 1 (1985).
- [7] Л.Н. Лариков, Г.А. Такзей, В.С. Флис и др. Докл. АН УССР Сер. А, 1031 (1976); Л.Н. Лариков, Г.А. Такзей, И.И. Сыч. Металлофизика **2**, 30 (1980).
- [8] А.В. Дерябин, В.Е. Роде. ФНТ **2**, 1450 (1976).
- [9] Г.А. Такзей, И.И. Сыч, А.З. Меньшиков. ФММ **52**, 1157 (1981).
- [10] M. Shiga, Y. Nakamura. J. Phys. Soc. Jap. **26**, 24 (1969).
- [11] Ch. Bottger, J. Hesse. Z. Phys. B.: Condens. Matter. **75**, 485 (1989).
- [12] A. Hofer, M. Fricke, Ch. Bottger, J. Hesse. Phys. Stat. Sol. (a) **148**, 551 (1995).
- [13] Дж. Займан. Электроны и фононы. Иностран. лит., М. (1962).
- [14] V.F. Los, S.P. Repetsky. J. Phys.: Condens. Mater. **6**, 1707 (1994); В.Ф. Лось, С.П. Репецкий, К.П. Годлевский. ФТТ **36**, 1, 194 (1994).
- [15] Ю.П. Ирхин. ФММ **6**, 214 (1958).
- [16] Y. Ishikawa. Physics and Applications of Invar Alloys. Maruzen Co., LTD, Tokyo (1978). P. 181.
- [17] A.N. Andriotis, E.N. Economou, Quiming Li, C.M. Soukoulis. Phys. Rev. **B47**, 9208 (1993).
- [18] А.З. Меньшиков, А.Е. Теплых. ФММ **44**, 1215 (1977).
- [19] M. Matsui, K. Sato, K. Adachi. J. Phys. Soc. Japan. **35**, 419 (1973).
- [20] S.S. Yan, L. Lui, F.R. Wang et al. Sol. State Commun. **54**, 831 (1985).