В. Н. Нарожный, В. Н. Краснорусский

Институт физики высоких давлений им. Л. Ф. Верещагина Российской академии наук 142190, Троицк, Москва, Россия

> Статья написана по материалам доклада на 36-м Совещании по физике низких температур (Санкт-Петербург, 2-6 июля 2012 г.)

Для монокристаллического MnSi проведены измерения кривых намагниченности в интервале температур (5.5–35) К и напряженности магнитного поля $H \leq 11$ кЭ для $\mathbf{H} \parallel [111]$, [001], [110]. Особое внимание уделялось области температур, находящейся вблизи температуры перехода MnSi в состояние с длиннопериодной геликоидальной структурой $T_N = 28.8$ К. Обнаружен ряд новых особенностей в магнитном поведении MnSi. Установлено, в частности, что в промежуточной области температур выше перехода ($28.8 \text{ K} = T_N \leq T < 31.5 \text{ K}$) наблюдаются аномалии на зависимостях dM(H)/dH, не характерные для типично парамагнитного состояния. Установлено, что линия характерного поля $H^*(T)$ этой аномалии является естественной экстраполяцией температурной зависимости поля перехода от конической к индуцированной ферромагнитной фазе, наблюдаютой при $T < T_N$. Сделан вывод о том, что свойства MnSi в промежуточной области обусловлены конической фазой (а не A-фазой). На основании полученных данных построены магнитные фазовые диаграммы MnSi для $\mathbf{H} \parallel [111]$, [001], [110] и проведено их сравнение с диаграммами, полученными ранее другими методами.

DOI: 10.7868/S004445101305011X

1. ВВЕДЕНИЕ

Coeдинение MnSi кристаллизуется в кубической решетке без центра инверсии (тип В20). Считается, что магнитные свойства MnSi носят преимущественно зонный характер. Отсутствие центра инверсии делает возможным в этой системе (помимо обычного обмена) взаимодействие типа Дзялошинского-Мория, которое, в свою очередь, приводит к образованию длиннопериодной геликоидальной структуры при $T < T_N = 28.8$ К с направлением осей геликоидов, определяемым более слабым анизотропным обменным взаимодействием, см., например, [1]. Особенностью MnSi является присутствие переходной области, прилегающей к магнитному переходу со стороны более высоких температур. В этой области теплоемкость, магнитная восприимчивость, температурный коэффициент электросопротивления и др. имеют аномалии, см., например, [2]. Природа подобного поведения MnSi до конца не ясна.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

В работе были проведены систематические измерения кривых статической намагниченности M(H)монокристаллов MnSi при T = (5.5-35) K в полях до 11 кЭ для Н || [111], [001], [110]. Особое внимание уделялось области температур, находящейся вблизи температуры перехода в состояние с длиннопериодной геликоидальной структурой $T_N = 28.8$ К, при которой в ряде работ наблюдались пики в теплоемкости, коэффициенте теплового расширения и магнитной восприимчивости. Исследовались монокристаллы MnSi, выращенные методом Бриджмена. Измерения намагниченности проводились на вибрационном магнитометре фирмы «Lake Shore Cryotronics» для трех указанных направлений магнитного поля. Поперечная конфигурация магнитного поля в магнитометре и возможность вращения оси подвеса образца давали возможность проводить измерения намагниченности для трех направлений поля при одном монтаже образца на держатель. Образец представлял собою куб с размером ребра около 3 мм, грани которого ориентированы перпендикулярно направлениям [110], [110]

^{*}E-mail: narozhnyivn@gmail.com

и [001]. Прецизионное измерение намагниченности M(H) позволило надежно определить дифференциальную магнитную восприимчивость dM(H)/dH методом численного дифференцирования, что, в свою очередь, помогло выявить ряд новых особенностей в магнитном поведении MnSi в различных диапазонах температур и магнитных полей.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

При 5.5 К $\leq T \leq 27.0$ К зависимость M(H)близка к линейной в полях до $H \approx (4-6)$ кЭ. Примеры кривых намагниченности M(H) и dM(H)/dHMnSi, полученных при **H** || [111] в трех различных температурных областях, показаны на рис. 1. При дальнейшем росте магнитного поля на зависимостях M(H) наблюдался излом. Подобное поведение зависимости M(H) при $T < T_N$ хорошо известно, оно связывается с переходом в индуцированную ферромагнитную фазу в достаточно больших полях, см., например, [3].

В данной работе выявлена дополнительная особенность на кривых M(H) и dM(H)/dH, проявляющаяся при 5.5 К $\leq T \leq 28.8$ К при различных направлениях H в полях от 80 Э до 1.3 кЭ, см. пример измерений при T = 5.5 К на рис. 1 и фазовые диаграммы для трех направлений поля (рис. 2–4), построенные по результатам наших магнитных измерений. Аномалии в свойствах MnSi в



Рис. 1. Примеры зависимостей намагниченности M и дифференциальной магнитной восприимчивости dM(H)/dH от напряженности магнитного поля H для MnSi при $\mathbf{H} \parallel [111]$ и T = 5.5, 29.0, 33.0 К. Для dM(H)/dH при T = 5.5 К стрелками показано направление изменения поля. Линии на зависимостях M(H) проведены для наглядности







Рис.3. Магнитная фазовая диаграмма MnSi для $\mathbf{H} \parallel [001]$

подобных полях наблюдались и ранее при изучении этого соединения другими методами (например, при исследовании поглощения ультразвука, рассеяния нейтронов и переменноточной магнитной восприимчивости). В данной работе было обнаружено,



Рис.4. Магнитная фазовая диаграмма MnSi для $\mathbf{H} \parallel [110]$

что положение этой особенности существенным образом зависит как от направления магнитного поля, так и от температуры, см. рис. 2-4. Отметим, что положение данной аномалии при Н || [110] лежит между соответствующими положениями при **Н** || [111] и **Н** || [001]. Кроме того, была обнаружена существенная необратимость в зависимостях M(H) в области этой аномалии для **H** || [111], см. зависимость dM(H)/dH при T = 5.5 K на рис. 1. Необратимость в зависимостях M(H) сохраняется для $\mathbf{H} \parallel [111]$ вплоть до T = 27.4 К. Вблизи же перехода (27.6 К $\leq T \leq 28.8$ К) кривые M(H) становятся практически обратимыми (эта область температур отмечена светлыми символами на рис. 2). Заметим, что для двух других направлений поля зависимости M(H) являются близкими к обратимым при всех температурах. Соответственно положение особенностей на линии M(H) при $H \approx 1$ кЭ на рис. 3, 4 отмечено светлыми символами. (Некоторая необратимость в M(H) и dM(H)/dH, все-таки наблюдающаяся для этих направлений поля, может быть охарактеризована шириной петли «гистерезиса», проявляющегося при повышении и последующем уменьшении поля. Ширина петли не превышает 200 Э. Существенно при этом, что при уменьшении поля до нуля значение dM(H)/dH практически восстанавливается, в отличие от случая Н || [111].) Для **Н** || [110] вблизи T_N наблюдалось расщепление пика на зависимости dM(H)/dH, связанного с описываемой аномалией, на два. Зависимость положения дополнительного пика от поля отмечена на рис. 4 светлыми треугольниками. Подобное поведение может быть связано с неустойчивостью геликоидальной структуры для данного направления **H**, по край-

908

ней мере, вблизи T_N .

Вопрос интерпретации описываемой выше особенности в поведении MnSi заслуживает отдельного рассмотрения. Как нам представляется, адекватное описание данной аномалии приведено в работах [4, 5] еще в 2006 г. В этих работах Малеевым теоретически [4], а Григорьевым с соавторами экспериментально [5] посредством рассеяния нейтронов было показано, что она связана с реориентацией магнитных доменов и образованием монодоменной магнитных доменов и образованием монодоменной величины магнитного поля. При этом коническое искажение геликоидальной структуры при поле, направленном параллельно оси геликоида, получается уже в сколь угодно малом конечном магнитном поле [4].

Тем не менее в целом ряде публикаций (см., например, [2, 6–17]) данная особенность связывалась и продолжает связываться не только с реориентацией магнитных доменов, но и с переходом от геликоидальной магнитной структуры к конической, что, с нашей точки зрения, является некорректным.

Начало данной интерпретации было положено в работе [6], в которой была предложена первая магнитная фазовая диаграмма MnSi. (Хотя на фазовой диаграмме, приведенной в этой работе, линия $H_r(T)$, соответствующая рассматриваемой аномалии, и не была указана, в тексте статьи в явном виде использовалось данное объяснение.) В последующих работах данной группы авторов фазовая диаграмма MnSi была несколько модифицирована, но сущность интерпретации осталась неизменной, см., например, [7]. Через некоторое время в работах другой группы авторов (см., например, [8]) стало указываться, что рассматриваемая аномалия связана с реориентацией магнитных доменов, но в то же время считалось, что коническая фаза формируется лишь выше поля реориентации. «Вторая волна» работ с неверной интерпретацией данной аномалии была начата работой [9], в которой линия $H_r(T)$ на фазовой диаграмме была уже явно указана. Авторы работы [9] считали, что эта линия представляет собой границу между геликоидальной и конической фазами. Необходимо отметить, что они описывали неискаженное поведение геликоида в полях меньших $H_r(T)$ в виде предположения. В последующих работах некоторых авторов статьи [9] (см., например, [10-14]) предположение [9] об отсутствии искажений геликоида в полях меньших $H_r(T)$ без всяких обоснований было заменено на утверждение, которое подразумевалось при описании полученных результатов. Данная интерпретация используется и в работах ряда других авторов (см., например, [15–17]), причем используется до последнего времени, несмотря на наличие корректного описания физики данной особенности поведения MnSi в работах [4, 5].

В чем же проблема этой весьма широко используемой в литературе [6-17] интерпретации? Дело в том, что она явно противоречит хорошо известной линейной зависимости намагниченности MnSi от Н, начиная с самых малых полей, см., например, одни из первых результатов по намагниченности MnSi [18]. В случае же сохранения в малых полях геликоидальной структуры без конических искажений намагниченность образца должна была бы быть равной нулю (или весьма близкой к нулю при конечных температурах) вплоть до полей образования конической структуры, что, очевидно, противоречит эксперименту. В частности, в наших опытах зависимости M(H) были близки к линейным, начиная с самых малых полей (по крайней мере, начиная с 20 Э, что значительно меньше поля реориентации магнитных доменов). Подобное поведение наблюдалось нами при всех температурах и для всех трех используемых направлений поля, что находится в согласии с работой [18] и другими экспериментальными работами по намагниченности MnSi. Таким образом, обсуждаемая интерпретация является некорректной, а фазовые диаграммы, построенные на ее основе, являются неточными.

Физическую картину данного явления можно охарактеризовать, основываясь на результатах [4, 5], следующим образом: чисто геликоидальная магнитная структура проявляется лишь в нулевом поле, а любое конечное поле, направленное вдоль оси геликоида, приводит к скашиванию магнитных моментов вдоль поля и к образованию конической структуры (скошенного геликоида), что, в свою очередь, ведет к появлению конечной намагниченности в направлении Н. При этом следует учитывать, что в нулевом поле существуют четыре типа магнитных доменов с осями геликоидов, направленными по четырем пространственным диагоналям куба. Если, например, **H** || [111], то для трех доменов с другими направлениями осей будут существовать проекции поля как вдоль, так и перпендикулярно их осям. Для произвольного направления Н возможны ситуации, когда поле будет перпендикулярно осям геликоидов некоторых типов доменов (не более двух). Для доменов других типов всегда будут существовать ненулевые проекции поля на их оси, что и приведет к коническим искажениям геликоидов. Случай поля, перпендикулярного оси геликоида, также рассмотрен в работе [4], где показано, что и для та-

кого направления Н будет проявляться компонента намагниченности вдоль поля, а геликоиды будут испытывать искажения, но не конического типа. Таким образом, в общем случае при повышении поля от нуля вплоть до полей реориентации магнитных доменов магнитная структура MnSi является полидоменной, при этом минимум два типа доменов в ненулевых полях будут иметь конические искажения. Выше поля реориентации доменов $H_r(T)$ (которое существенным образом зависит от направления **H**) формируется монодоменная коническая магнитная структура с осью скошенного геликоида, направленной по полю. Если же после предварительного перевода образца достаточно большим полем в монодоменное магнитное состояние уменьшать Н до значений, меньших поля реориентации магнитных доменов, то при Н || [111], как следует из наших результатов для dM(H)/dH при T = 5.5 K, показанных на рис. 1, образец остается в метастабильном монодоменном состоянии вплоть до уменьшения поля до нуля. При других направлениях Н при уменьшении поля до значений, меньших $H_r(T)$, наблюдается возвращение образца в полидоменное состояние.

При 27.2 К $\leq T < T_N = 28.8$ К, т.е. в непосредственной близости от T_N , на зависимостях M(H) отчетливо проявляются еще две аномалии (на рисунках не показаны). Их можно связать, в согласии с предшествующими работами, с образованием вблизи T_N так называемой A-фазы, границы которой существенно зависят от направления поля, см. рис. 2–4.

Для А-фазы в некоторых работах (см., например, [19]) характерным считается перпендикулярность оси геликоида направлению Н. В ряде недавних публикаций (в частности, в работе [10]) результаты по рассеянию нейтронов для А-фазы интерпретировались как свидетельство образования в ней более сложной магнитной структуры (решетки скирмионов). Возможность образования скирмионов в MnSi (не только в A-фазе), а также в ряде других веществ активно обсуждается в последнее время. Возможность образования в MnSi спонтанной скирмионной фазы вблизи T_N впервые отмечалась в работе [20]. А в работе [21] результаты по поляризованному рассеянию нейтронов интерпретировались как свидетельство проявления спонтанного скирмионного состояния при $T > T_N$. С другой стороны, авторы работы [22] полагают, что все результаты по рассеянию нейтронов в MnSi, интерпретируемые обычно как основные свидетельства существования в ней скирмионов, могут быть успешно объяснены и без привлечения скирмионной модели.

При температурах, слегка превышающих температуру перехода $(T_N < T \leq 31 \text{ K})$, мы обнаружили, в частности, что на кривых M(H) наблюдаются особенности, отчетливо проявляющиеся при построении полевых зависимостей дифференциальной магнитной восприимчивости dM(H)/dH, см. кривую dM(H)/dH при T = 29.0 К на рис. 1. При T > 33 К подобные аномалии на кривых M(H) и dM(H)/dHне наблюдались и эти зависимости могут считаться типично парамагнитными. При построении зависимостей характерного поля особенности H^* от температуры линии $H^*(T)$ при $T_N < T \leq 31~{
m K}$ (для всех направлений Н) оказываются естественной экстраполяцией зависимостей поля перехода к индуцированной ферромагнитной фазе, наблюдавшихся при $T < T_N$, см. рис. 2–4. Заметим также, что при $T > T_N$ магнитное поведение MnSi является изотропным, что характерно для парамагнитного состояния. Таким образом, фазу при $T_N < T < 31 {
m K}$ можно назвать (следуя, например, работе [22]) промежуточной, так как она располагается между магнитно упорядоченной фазой и областью с типично парамагнитным поведением. В промежуточной фазе соединение MnSi имеет свойства как типичные для парамагнитного состояния (магнитная изотропия), так и нехарактерные для такого состояния, что сближает его поведение со свойственным магнитоупорядоченному состоянию (аномалии в намагниченности при $H^*(T)$). При повышении температуры особенность, наблюдаемая в промежуточной фазе, постепенно исчезает, т. е. наблюдается кроссовер между промежуточной фазой и фазой с типично парамагнитным поведением.

Следует отметить, что при $T > T_N = 28.8$ К следы особенностей, связанных с А-фазой, становятся едва видимыми. Они различимы лишь в узком интервале температур, отстоящих от T_N не более, чем на 0.2 К, см. зависимость dM(H)/dH при T == 29.0 К на рис. 1. Согласно модели, предложенной в работе [20], впервые описывающей поведение MnSi с помощью скирмионов, область существования скирмионов должна быть примерно симметричной относительно T_N , см. работу [20] и приложение к ней. (Строго говоря, модель [20] относится к состоянию в нулевом поле. Попытка построения модели скирмионов для A-фазы MnSi предпринята в работе [10].) Наши же результаты показывают, что если A-фаза и существует при T > T_N, то лишь в очень узком интервале температур, существенно меньшем, чем область существования А-фазы при $T < T_N$, см. рис. 2–4. Учитывая также, что при $T_N < T \leq 31$ К кривая $H^*(T)$ является естествен-

ной экстраполяцией поля перехода к индуцированной ферромагнитной фазе при $T < T_N$, можно заключить, что магнитные свойства промежуточной области (28.8 К $= T_N < T \leq 31$ К) связаны не с А-фазой, а с областью с коническим магнитным порядком, для которой скирмионный порядок в литературе не отмечался. Результаты по рассеянию нейтронов свидетельствуют [22], что в промежуточной области наблюдаются весьма необычные геликоидальные флуктуации. (Авторы работы [22] делят промежуточную область на две части, для которых характерными являются изотропные и анизотропные (вблизи T_N) геликоидальные флуктуации.) Естественным является предположение о том, что наблюдаемые нами особенности в промежуточной области температур соответствуют «коллапсу» флуктуирующих частей геликоидов в поле $H^*(T)$ подобно коллапсу статической конической структуры при переходе с ростом Н к индуцированной ферромагнитной фазе. Нетривиальным является тот факт, что при измерении статической намагниченности удается видеть следы подобного коллапса и в промежуточной области.

При $T \geq 33$ К наблюдалось типично парамагнитное поведение без каких-либо особенностей на кривых M(H) и dM(H)/dH и какой-либо магнитной анизотропии.

4. ВЫВОДЫ

На основании полученных нами данных по статической намагниченности MnSi построены магнитные фазовые диаграммы для **H** || [111], [001], [110].

Всю область температур (по мере понижения T) можно разбить на три интервала.

Область I. $(T \ge 31.5 \text{ K})$ — область с типично парамагнитным поведением.

Область II. (28.8 К = $T_N \leq T < 31.5$ К) — промежуточная область, для которой наблюдаются как свойства типично парамагнитной фазы, так и особенности, характерные для магнитоупорядоченной фазы.

Область III. ($T < T_N = 28.8 \text{ K}$) — область магнитноупорядоченного состояния (внутри этой области расположена также *A*-фаза со сложной магнитной структурой, природа которой до конца не ясна).

В областях I и II намагниченность изотропна. В области III наблюдается магнитная анизотропия как для границ A-фазы, так и для особенностей, связанных с реориентацией магнитных доменов. В то же время, в согласии с предыдущими публикациями, положение линии, соответствующей переходу к индуцированному полем ФМ-состоянию, практически изотропно. В области II на кривых намагниченности наблюдаются характерные особенности, обозначенные на фазовых диаграммах в виде линий $H^*(T)$. Линии $H^*(T)$ являются естественной экстраполяцией зависимостей поля перехода к индуцированной ферромагнитной фазе, наблюдавшихся при $T < T_N$. Таким образом, свойства MnSi в промежуточной области обусловлены свойствами в конической фазе (а не в *A*-фазе).

В области III при малых полях наблюдались особенности, связанные с реориентацией магнитных доменов и постепенным образованием монодоменной магнитной структуры при росте поля. Кривые намагниченности для $\mathbf{H} \parallel [111]$ и при 5.5 К $\leq T \leq 27.6$ К являются необратимыми. После перевода образца в магнитное монодоменное состояние при последующем уменьшении поля образец остается в метастабильном монодоменном магнитном состоянии вплоть до H = 0. В то же время, зависимости M(H) для двух других направлений поля являются близкими к обратимым, т. е. при уменьшении поля ниже поля реориентации магнитных доменов монодоменная магнитнах структура не сохраняется, а образец переходит в полидоменное состояние.

После окончания работы над текстом данной статьи нам стало известно о выходе работы [23], в которой также исследуются магнитные свойства MnSi. Экспериментальные результаты [23] в основном близки к сообщаемым в данной статье. В то же время авторы работы [23] продолжают, как и в более ранних публикациях [9–11], полагать, что переход от геликоидальной магнитной структуры к конической происходит в MnSi лишь при достижении определенного магнитного поля B_{c1} , что находится в явном противоречии с их же результатами по зависимостям M(B) в малых полях.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. P. Bak and M. H. Jensen, J. Phys. C 13, L881 (1980).
- **2**. С. М. Стишов, А. Е. Петрова, УФН **181**, 1157 (2011).
- D. Bloch, J. Voiron, V. Jaccarino et al., Phys. Lett. A 51, 259 (1975).
- 4. S. V. Maleev, Phys. Rev. B 73, 174402 (2006).

- S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, A. I. Okorokov et al., Phys. Rev. B 74, 214414 (2006).
- S. Kusaka, K. Yamamoto, T. Komatsubara et al., Sol. St. Comm. 20, 925 (1976).
- Y. Ishikawa, G. Shirane, J. A. Tarvin et al., Phys. Rev. B 16, 4956 (1977).
- K. Kadowaki, K. Okuda, and M. Date, J. Phys. Soc. Jpn. 51, 2433 (1982).
- C. Thessieu, C. Pfleiderer, A. N. Stepanov et al., J. Phys.: Condens. Matter 9, 6677 (1997).
- S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz et al., Science 323, 915 (2009).
- A. Neubauer, C. Pfleiderer, B. Binz et al., Phys. Rev. Lett. 102, 186602 (2009).
- C. Pfleiderer, A. Neubauer, S. Mühlbauer et al., J. Phys.: Condens. Matter 21, 164215 (2009).
- C. Pfleiderer, T. Adams, A. Bauer et al., J. Phys.: Condens. Matter 22, 164207 (2010).
- F. Jonietz, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer et al., Science 330, 1648 (2010).
- M. Yamada, T. Goto, and T. Kanomata, J. Alloys and Compounds 364, 37 (2004).
- 16. С. В. Демишев, А. В. Семено, А. В. Богач и др., Письма в ЖЭТФ 93, 231 (2011).
- S. V. Demishev, V. V. Glushkov, I. I. Lobanova et al., Phys. Rev. B 85, 045131 (2012).
- 18. H. Wernick, G. K. Wertheim, and R. C. Sherwood, Mat. Res. Bull. 7, 1431 (1972).
- S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, A. I. Okorokov et al., Phys. Rev. B 73, 224440 (2006).
- 20. U. K. Rößler, A. N. Bogdanov, and C. Pfleiderer, Nature 442, 797 (2006).
- C. Pappas, E. Lelievre-Berna, P. Falus et al., Phys. Rev. Lett. 102, 197202 (2009).
- 22. S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, E. V. Moskvin et al., Phys. Rev. B 81, 144413 (2010).
- 23. A. Bauer and C. Pfleiderer, Phys. Rev. B 85, 214418 (2012).