## АНОМАЛЬНОЕ ПОВЕДЕНИЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО СОПРОТИВЛЕНИЯ MnSi В ОБЛАСТИ ФЕРРОМАГНИТНОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА

А. Е. Петрова<sup>a</sup>, Е. Д. Бауэр<sup>b</sup>, В. Н. Краснорусский<sup>a</sup>, С. М. Стишов<sup>a,b\*</sup>

<sup>а</sup> Институт физики высоких давлений Российской академии наук 142092, Троицк, Московская обл., Россия

> <sup>b</sup>Los Alamos National Laboratory 87545, Los Alamos, New Mexico, USA

Поступила в редакцию 31 июля 2006 г.

Представлены результаты измерений электрического сопротивления монокристалла MnSi в области ферромагнитного фазового перехода при атмосферном и высоком давлениях. В отличие от предыдущих работ, средой, передающей давление, являлся сжатый гелий. Показано, что температурная производная электрического сопротивления имеет вид острого максимума на линии фазового перехода на всем его протяжении. Более того, как оказалось, найденные максимумы имеют тонкую структуру: при температурах несколько выше, приблизительно на 0.5 К, температуры пика обнаруживается отчетливое «плечо», указывающее на существование нетривиальных флуктуаций в парамагнитной фазе MnSi. Эта особенность исчезает при давлении около 0.35 ГПа, соответствующем координате трикритической точки.

 $PACS:\ 62.50.+p,\ 64.60.Kw,\ 72.10.Di,\ 75.30.Kz,\ 75.40.-s,\ 75.40.Cx$ 

Интерметаллическое соединение MnSi испытывает фазовый переход второго рода при температуре T<sub>c</sub> немного ниже 30 K и, приобретая геликоидальную магнитную структуру, становится слабым зонным ферромагнетиком. При увеличении давления температура перехода T<sub>c</sub> уменьшается и стремится к нулю при давлениях около 1.4 ГПа [1]. Раннее было обнаружено [2,3], что λ-сингулярность магнитной восприимчивости  $\chi_{AC}$  при фазовом переходе в MnSi с увеличением давления постепенно деформируется и вырождается в простую ступеньку при давлениях выше 1 ГПа. Это послужило основанием для того, чтобы сделать вывод о существовании трикритической точки на кривой фазового перехода в MnSi с координатами  $P \approx 1.2$  ГПа,  $T \approx 12$  К [2,3]. Этот вывод частично пересмотрен в работе [4] на основании новых измерений магнитной восприимчивости  $\chi_{AC}$  MnSi с использованием сжатого гелия как среды, передающей давление, и, хотя само существование трикритической точки на линии фазового перехода в MnSi было подтверждено, ее координаты

 $P_{tr} \approx 0.355$  ГПа,  $T_{tr} \approx 25.2$  К оказались существенно иными. Ряд интригующих черт в поведении MnSi был обнаружен в исследованиях при высоких давлениях. Сильное отклонение от фермижидкостного поведения в парамагнитной фазе было установлено в работе [5]. Необычное спиновое состояние (частичный порядок) в парамагнитной фазе было найдено в работе [6]. Для объяснения упомянутых явлений были предложены новые концепции: «голубой квантовый туман» [7], «геликоидальный спиновый кристалл» [8] и скирмионоподобные текстуры [9].

Учитывая, что природа новых явлений, обнаруженных в MnSi, по-видимому, связана с особенностями спиновых флуктуаций, мы провели ряд аккуратных измерений сопротивления монокристалла MnSi при атмосферном и высоком давлениях в среде сжатого гелия. Первоначальная цель настоящей работы состояла в исследовании поведения температурного коэффициента сопротивления  $d\rho/dT$  при фазовом переходе. В соответствии с теоретическими заключениями [10–12], температурный коэффициент сопротивления расходится при фазовом переходе второго рода и может быть охарактеризован статическими

<sup>\*</sup>E-mail: sergei@hppi.troitsk.ru

критическим показателем. Однако, в противоположность нашим ожиданиям, мы обнаружили, что пик  $d\rho/dT$  при  $T_c$  сопровождается ясно различимым плечом в его высокотемпературной части, исчезающим при давлении около 0.35 ГПа. Этот эффект прекрасно коррелирует с эффектом затухания ультразвука [13], поведением теплового расширения [14] и поведением теплоемкости [15], обнаруженными в критической области в MnSi при атмосферном давлении, и является убедительным доказательством существования флуктуаций, отличных от флуктуаций параметра порядка, обычно имеющих место в критической области.

Монокристалл MnSi был выращен из раствора Mn и Si в расплаве олова. Для измерения электрического сопротивления к образцу размером  $0.5 \times 0.3 \times 0.3$  мм<sup>3</sup> приваривались четыре платиновые проволочки диаметром 25 мкм. При атмосферном давлении температура  $T_c$  ферромагнитного фазового перехода равнялась  $29.25 \pm 0.02$  K, а отношение сопротивлений  $R_{300}/R_{2.1}$  приблизительно равнялось 100. Кристалл помещался в камеру высокого давления, изготовленную из бериллиевой бронзы. В качестве среды, передающей давление, использовались жидкий и твердый гелий. Температура измерялась калиброванным датчиком Cernox, расположенным в отверстии корпуса камеры, с точностью приблизительно 0.05 К. Давление в жидком гелии определялось калиброванным манганиновым манометром с точностью 10<sup>-3</sup> ГПа. Давление в твердом гелии вычислялось на основании экспериментально определяемого давления кристаллизации гелия и его уравнения состояния. Если учитывать только погрешность, связанную с определением давления кристаллизации гелия и неопределенностью уравнения состояния, то точность измерения давления в твердом гелии можно приблизительно оценить величиной 10<sup>-2</sup> ГПа. Однако в нашем эксперименте существует по крайней мере еще один весьма существенный источник погрешности в определении давления. Дело в том, что при проведении соответствующих вычислений для определения давления мы исходим из предположения, что затвердевание гелия при достижении точки кристаллизации происходит изохорически. На самом деле изохоричность процесса кристаллизации никогда не бывает совершенной, и это обстоятельство, а также, возможно, ряд других неучтенных факторов могут приводить к систематической погрешности определения давления вдоль отдельных изохор, превышающей приведенное значение.



Рис.1. Температурные зависимости удельного электрического сопротивления  $\rho(T)$  MnSi вдоль различных квазиизобар, соответствующих различному давлению на линии фазового перехода: 0, 0.2, 0.32, 0.43, 0.54, 0.63, 0.7, 0.885, 0.96, 1.053 ГПа (справа налево)

Электрическое сопротивление измерялось стандартным четырехконтактным методом на постоянном токе. Экспериментальная установка, включающая генератор высокого давления и криостат, описана в работах [4, 16].

Всего было проведено 24 серии измерений электрического сопротивления монокристалла MnSi вдоль квазиизобар<sup>1)</sup> при температурах от 2 до 100 К и давлениях до 1.5 ГПа. Экспериментальные данные частично представлены на рис. 1.

Попытка описания результатов измерений в области низких температур полиномами, содержащими потенциально значимые члены в рамках ферми-жидкостного подхода ( $T^2$  — рассеяние на спиновых флуктуациях и/или  $T^5$  — рассеяние на флуктуациях плотности — фононах) [17, 18], дала достаточно удовлетворительные результаты. Однако мы наблюдали небольшое, но систематическое отклонение поведения экспериментальных данных от аппроксимирующих полиномов при низких температурах. Замена  $T^2$  на  $T^n$  улучшает ситуацию, но не исправляет ее полностью, при этом всегда получает

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup> Обычная экспериментальная процедура начинается с охлаждения камеры высокого давления, содержащей некоторое количество сжатого гелия и образец. При кристаллизации гелия капилляр высокого давления блокируется твердым гелием [4, 11], и дальнейшее охлаждение происходит при постоянном объеме. Однако, поскольку сжимаемость и тепловое расширение образца MnSi существенно отличны от соответствующих свойств гелия, его охлаждение и нагревание не являются вполне изобарическими или изохорическими.

ся n < 2 (нефермижидкостное поведение). С другой стороны, как видно из рис. 1, производная электрического сопротивления MnSi по давлению положительна при  $T < T_c$  и отрицательна при  $T > T_c$  (см. также [3]). Это, по-видимому, означает, что флуктуации параметра порядка, играющие доминирующую роль при рассеянии электронов в критической области, продолжают давать существенный вклад в электрическое сопротивление MnSi при значительном удалении от линии фазового перехода. Следовательно, при анализе поведения сопротивления MnSi необходимо принимать во внимание этот важный фактор.

Следует отметить, что остаточное электрическое сопротивление MnSi, полученное в результате экстраполяции сопротивления к T = 0 от  $T \approx 1.7-2$  K, уменьшается монотонно от 2.25 до 2.11 мкОм см при увеличении давления. Таким образом, многократное циклирование давления, охлаждение и нагревание не вносят дополнительных дефектов в образец.

Температурная зависимость сопротивления MnSi выше линии фазового перехода явно проявляет признаки насыщения при  $T \to \infty$  [19].

Проанализируем теперь поведение температурного коэффициента сопротивления  $d\rho/dT$  на линии фазового перехода. Производная электрического сопротивления  $\rho$  по температуре вычислялась как среднее наклонов в двух смежных точках из массива первичных экспериментальных данных. Результаты этой процедуры изображены на рис. 2 и 3 (на рис. 3 показаны также слаживающие кривые). Примечательно, что нормированные зависимости  $(1/\rho)(d\rho/dT)(T)$  (рис. 26) имеют  $\lambda$ -форму, что характерно для поведения многих расходящихся величин в критической области.

Как видно из рис. 3, при атмосферном давлении кривая  $(d\rho/dT)(T)$  имеет ясно различимое плечо выше  $T_c$ , исчезающее с давлением. Эволюция формы пика  $d\rho/dT$  изображена на рис. 4. Плечо на кривой  $(d\rho/dT)(T)$  становится неразличимым при давлении около 0.35 ГПа, соответствующем координате трикритической точки [4].

Таким образом, как видно из приведенных данных, при низких давлениях пик  $d\rho/dT$  является двухкомпонентным и состоит из узкого и широкого пиков, разделенных не более чем на полградуса. Недостаток априорных данных о форме пиков и характере фона не позволяет разделить их надежным способом. Явное перекрытие двух пиков делает также ненадежным попытку вычисления критических показателей на основании поведения  $d\rho/dT$  [10–12].



Рис.2. Температурные зависимости обычного  $d\rho/dT$  (a) и нормированного  $(1/\rho)(d\rho/dT)$  (б) температурных коэффициентов сопротивления при различных давлениях: 0, 0.32, 0.70, 0.95, 1.13 ГПа (слева направо)

Тем не менее аппроксимация  $d\rho/dT$  при  $T < T_c$  полиномом,

$$\frac{d\rho}{dT} = a + bT + c(T_c - T)^{-m},$$

дает  $m \approx 0.25$  при низких давлениях. Это значение является разумным для критического показателя, характеризующего поведение теплоемкости спиновых систем с геликоидальным упорядочением<sup>2)</sup> [20]. При давлениях больше 0.3–0.4 ГПа значение искомого показателя становится весьма чувствительным к интервалу аппроксимации, что, по-видимому, указывает на изменение характера фазового перехода.

Суммируя сказанное выше, следует подчеркнуть, что экспериментальные данные демонстрируют сложное поведение температурного коэффициента сопротивления MnSi в области фазового перехо-

<sup>&</sup>lt;sup>2)</sup> Используя гиперскэйлинговое соотношение  $d\nu = 2 - \alpha$  и значение  $\nu = 0.62$  [21], находим для MnSi при атмосферном давлении  $\alpha = 0.14$ .



Рис. 3. Примеры поведения температурного коэффициента сопротивления  $d\rho/dT$  при атмосферном (*a*) и высоком ( $\delta$ ) давлениях в окрестности  $T_c$ . Точки — температурный коэффициент сопротивления, вычисленный как среднее наклонов в двух смежных точках из массива первичных экспериментальных данных. Сплошные линии — результат сглаживания

да. Как видно из рис. 4, функция  $(d\rho/dT)(T)$ , представляющая собой при атмосферном давлении сильно асимметричный и не вполне разрешенный дублет с одной из компонент в виде острого пика, превращается в симметричный единичный пик при давлении, соответствующем трикритической точке. Как отмечалось ранее, аналогичная дублетная структура была обнаружена при измерениях поглощения ультразвука [13], теплового расширения [14] и теплоемкости [15] в области фазового перехода MnSi, что, очевидно, согласуется с нашими наблюдениями. К сожалению, мало что известно о природе этой структуры, и мы знаем только то, что высокотемпературный сателлит не проявляет себя при измерении магнитной восприимчивости [3, 4]. Сравнение экспериментальных данных показывает, что фазовому магнитному переходу соответствует резкий пик со сторо-



Рис. 4. Поведение температурного коэффициента сопротивления  $d\rho/dT$  в окрестности  $T_c$  при давлениях 1.05, 0.95, 0.70, 0.38, 0.32, 0.10, 0.03 ГПа (сверху вниз)



Рис.5. Зависимость температуры Кюри MnSi от давления по данным настоящих измерений  $d\rho/dT$ (▲) и по данным измерений магнитной восприимчивости  $\chi$  (•) [4]. На вставке видно, что разница между результатами, полученными двумя методами определения  $T_c$ , не превышает 0.10 К

ны низкотемпературной части  $d\rho/dT$  (рис. 5). Таким образом, наблюдаемое плечо на кривой  $d\rho/dT$ , возможно, является следствием проявления изменений в ближнем спиновом порядке или в спиновой текстуре [8,9]. Однако нет оснований полагать, что здесь имеет место обычный фазовый переход. Тем не менее нельзя исключить и возможность некоторого топологического перехода при температурах выше  $T_c$ , при этом вместо трикритической точки на фазовой диаграмме MnSi мы бы имели своего рода поликритическую точку. В противном случае исчезновение плеча на  $d\rho/dT$  следует связывать с возникновением области объемной нестабильности в окрестности трикритической точки<sup>3</sup>.

В итоге мы обнаружили дублетную структуру температурной зависимости электрического сопротивления при ферромагнитном фазовом переходе MnSi. Очевидно, что высокотемпературная составляющая дублета имеет также флуктуационную природу, хотя природа этих флуктуаций безусловно отличается от природы флуктуаций параметра порядка, обычно имеющих место вблизи точки Кюри. Дальнейшие исследования поликритических эффектов, отклонений от фермижидкостного поведения и спиновой структуры в парамагнитной фазе, по-видимому, помогут найти ключ к физической интерпретации настоящих наблюдений.

Авторы признательны В. А. Сидорову за техническую помощь, Дж. Д. Томпсону за прочтение рукописи и полезные замечания. Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 06-02-16590), Программы фундаментальных исследований Отделения физических наук РАН «Сильнокоррелированные электроны в полупроводниках, металлах, сверхпроводниках и магнитных материалах» и Программы фундаментальных исследований Президиума РАН «Физика и механика сильно сжатого вещества и проблемы внутреннего строения Земли и планет».

## ЛИТЕРАТУРА

- J. D. Thompson, Z. Fisk, and G. G. Lonzarich, Physica B 161, 317 (1989).
- C. Pfleiderer, G. J. McMullan, and G. G. Lonzarich, Physica B 206-207, 847 (1995).
- C. Pfleiderer, G. J. McMullan, S. R. Julian, and G. G. Lonzarich, Phys. Rev. B 55, 8330 (1997).
- 4. A. E. Petrova, V. Krasnorussky, J. Sarrao, and S. M. Stishov, Phys. Rev. B 73, 0524091 (2006).

- N. Doiron-Leyraud, I. R. Walker, L. Taillefer, M. J. Steiner, S. R. Jullan, and G. G. Lonzarich, Nature 425, 595 (2003).
- C. Pfleiderer, D. Reznik, L. Pintschovius, H. V. Löhneysen, M. Garst, and A. Rosch, Nature 427, 227 (2004).
- S. Tewari, D. Belitz, and T. R. Kirkpatrick, Phys. Rev. Lett. 96, 047207 (2006).
- B. Binz, A. Vishwanath, and V. Aji, Phys. Rev. Lett. 96, 207202 (2006).
- 9. A. N. Bogdanov, U. K. Rößler, and C. Pfleiderer, Physica B 359-361, 1162 (2005); E-print archives cond-mat/0603103.
- В. М. Набутовский, А. З. Паташингский, ФТТ 10, 3121 (1968).
- 11. M. E. Fisher and J. S. Langer, Phys. Rev. Lett. 20, 665 (1968).
- T. G. Richard and D. J. W. Geldart, Phys. Rev. Lett. 30, 290 (1973).
- S. Kusaka, K. Yamamoto, T. Komatsubara, and Y. Ishikawa, Sol. St. Comm. 20, 925 (1976).
- 14. M. Matsunaga, Y. Ishikawa, and T. Nakajima, J. Phys. Soc. Jpn. 51, 1153 (1982).
- C. Pfleiderer, J. Magn. Magn. Mat. 226–230, 23 (2001).
- A. E. Petrova, V. A. Sidorov, and S. M. Stishov, Physica B 359-361, 1463 (2005).
- T. Moria, Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York-Tokyo (1985).
- F. J. Blatt, Physics of Electronic Conduction in Solids, McGraw-Hill Book Company (1968).
- H.Wiesmann, M. Gurvitch, H. Lutz, A. Ghosh, B. Schwarz, M. Strongin, P. B. Allen, and J. W. Halley, Phys. Rev. Lett. 38, 782 (1977).
- 20. H. T. Diep, Phys. Rev. B 39, 397 (1989).
- S. V. Grigoriev, S. V. Maleev, A. I. Okorokov, Yu. O. Chetverikov, R. Georgii, P. Böni, D. Lamago, H. Eckerlebe, and K. Pranzas, Phys. Rev. B 72, 134420 (2005).

<sup>&</sup>lt;sup>3)</sup> При фазовом переходе первого рода имеется область запрещенных объемов, которую можно назвать объемной щелью, где невозможно существование однородного состояния вещества. Ряд специфических характеристик фазового перехода второго рода может «проваливаться» в объемную щель при изменении рода перехода и, следовательно, они становятся ненаблюдаемыми.