

КИРАЛЬНЫЙ ЗОННЫЙ МАГНЕТИК MnSi

C. M. Стишов^{a,b}, A. E. Петрова^{a,b**}*

*^a Институт физики высоких давлений Российской академии наук
108840, Троицк, Москва, Россия*

*^b Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 20 января 2020 г.,
после переработки 20 января 2020 г.
Принята к публикации 6 марта 2020 г.

Дан краткий обзор результатов экспериментальных исследований магнитного фазового перехода в киральном магнетике MnSi. Приведены доказательства в пользу флюктуационной природы фазового перехода первого рода в исследуемом магнетике. Обсуждается природа побочного максимума на кривых, описывающих поведение теплоемкости, коэффициента теплового расширения, температурной производной электросопротивления и поглощения звука. Анализируется ситуация, связанная с проявлением квантового критического поведения в MnSi и (MnFe)Si при низких температурах.

Статья для специального выпуска ЖЭТФ, посвященного 100-летию А. С. Боровика-Романова

DOI: 10.31857/S0044451020070184

1. ВВЕДЕНИЕ

В 1956 г. А. С. Боровик-Романов и М. П. Орлова обнаружили слабый ферромагнитный момент в ряде антиферромагнитных карбонатов [1]. Несколько ранее этот эффект наблюдался в антиферомагнитном гематите. Эти исследования привлекли внимание И. Е. Дзялошинского, который построил теорию специфического релятивистского взаимодействия, ответственного за наблюдаемое явление [2]. Подобную теорию разработал также Т. Мориа [3]. Это взаимодействие в настоящее время носит название взаимодействия Дзялошинского – Мориа (ДМ). Ярким проявлением взаимодействия ДМ является образование геликоидальных (киральных) магнитных структур. Модельным геликомагнетиком, наглядно демонстрирующим эффекты взаимодействия ДМ, является силицид марганца MnSi. MnSi кристаллизуется в кубической структуре типа *B20* с параметром элементарной ячейки $a \approx 4.56 \text{ \AA}$ (рис. 1), пространственная группа которого *P213* (*T4*) не содержит центра инверсии. Соответственно в энергии

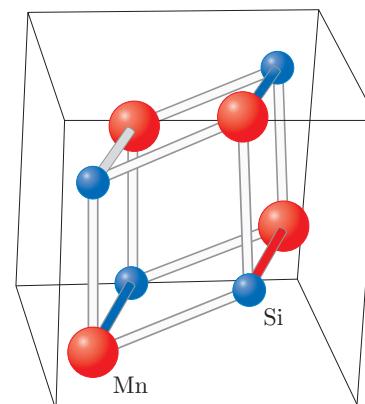


Рис. 1. Кристаллическая структура MnSi

MnSi содержится релятивистский вклад ДМ вида $D[\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j]$, что определяет возможность существования геликоидальной магнитной структуры. Геликоидальная магнитная структура в MnSi представляет собой спираль с периодом 180 \AA и волновым вектором $\mathbf{q} \approx 0.035 \text{ \AA}^{-1}$, направленным вдоль [111].

Существенно, что MnSi плавится конгруэнтно, что позволяет выращивать крупные кристаллы хорошего качества, пригодные для проведения различных экспериментов.

* E-mail: sergei@hppi.troitsk.ru

** E-mail: apetrova@hppi.troitsk.ru

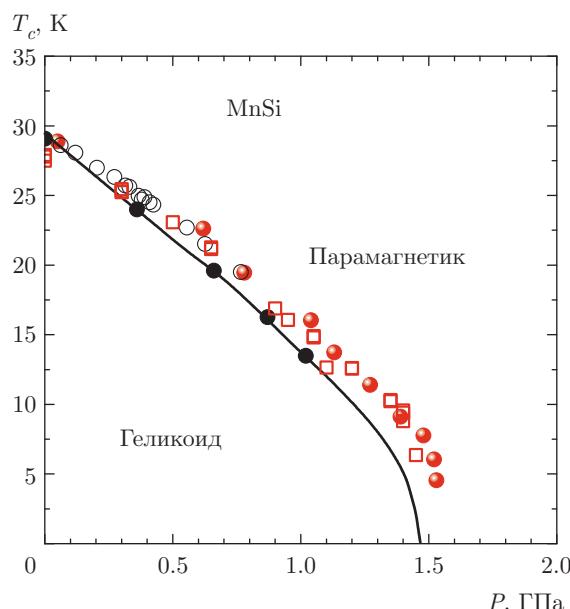


Рис. 2. (В цвете онлайн) Фазовая $P-T$ -диаграмма MnSi по данным различных работ. Обозначения см. в работе [7]

Ниже мы рассмотрим основные экспериментальные факты, характеризующие физику этого интересного материала, при этом мы не будем придерживаться исторической последовательности в изложении и добиваться полноты литературных ссылок, тем более, что существует достаточно обширная обзорная литература по этому вопросу [4–6].

2. МАГНИТНЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В MnSi

Итак, температура магнитного фазового перехода в MnSi при атмосферном давлении составляет величину около 29 К. Под действием гидростатического давления P температура фазового перехода T_c стремится к нулю при $P \approx 1.4$ ГПа (рис. 2). Естественно, при этом возникает вопрос о квантовом критическом поведении MnSi при $T = 0$, но эту ситуацию мы обсудим несколько позже.

На рис. 2 изображена фазовая $P-T$ -диаграмма MnSi, построенная по данным измерений электрического сопротивления, магнитной восприимчивости и теплового расширения. Отметим нетривиальный характер магнитного фазового перехода в MnSi, как это показано на рис. 3.

Заметим вполне совершенное подобие в поведение величин, изображенных на рис. 3. Как следует из рис. 3, фазовый переход в MnSi характеризуется острыми пиками теплоемкости, коэффициента теп-

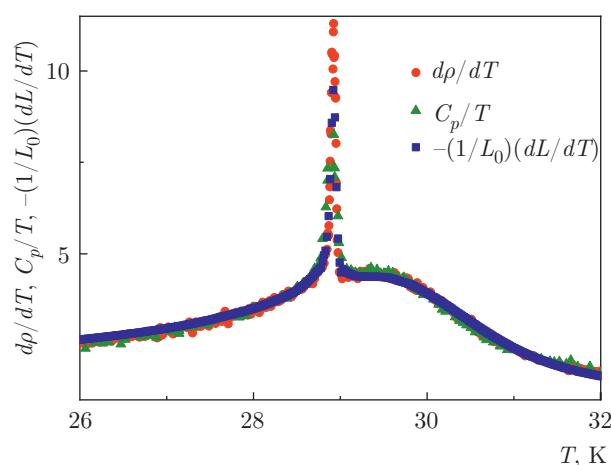


Рис. 3. (В цвете онлайн) Теплоемкость, деленная на температуру, C_p/T , линейный коэффициент теплового расширения $-(1/L_0)(dL/dT)$ и температурный коэффициент сопротивления $d\rho/dT$ MnSi в приведенных единицах как функции температуры [8]

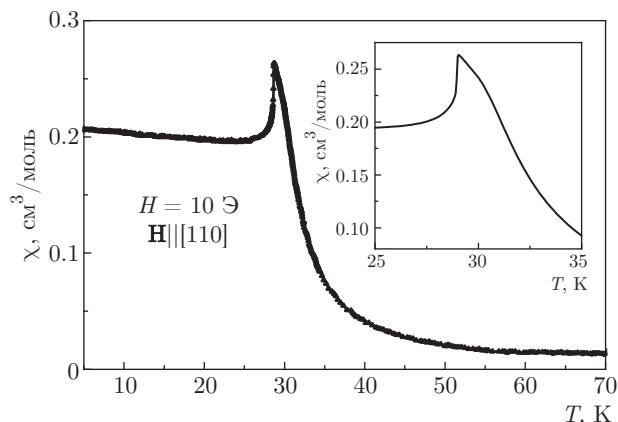


Рис. 4. Магнитная восприимчивость монокристалла MnSi [8]

лового расширения и температурного коэффициента электрического сопротивления, что указывает на фазовый переход первого рода. Квазискачки магнитной восприимчивости (рис. 4) и интенсивности малоуглового рассеяния (рис. 5) вполне соответствуют этой ситуации.

Характерной чертой фазового перехода в MnSi является наличие заметного «плеча», или побочного максимума в высокотемпературной части криевых, отображающего поведение C_p , dL/dT , $d\rho/dT$ (см. рис. 3), существование которого приписывается интенсивным киральным флуктуациям при $T > T_c$. Заметим, что не существует симметрийных ограничений для реализации магнитного фазового перехода

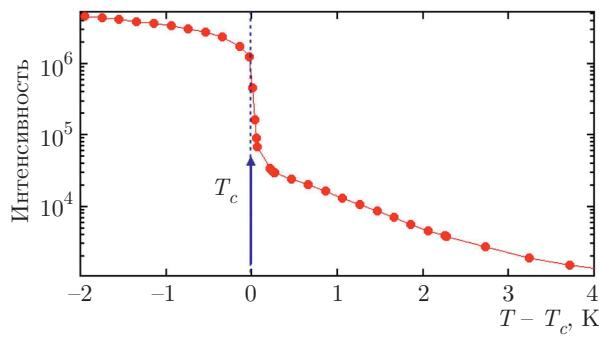


Рис. 5. Температурная зависимость логарифма интенсивности сверхструктурного пика, соответствующего геликоидальной спиновой структуре по данным малоугловых нейтронных исследований [9]. Интенсивность рассеяния падает на порядок в точке фазового перехода

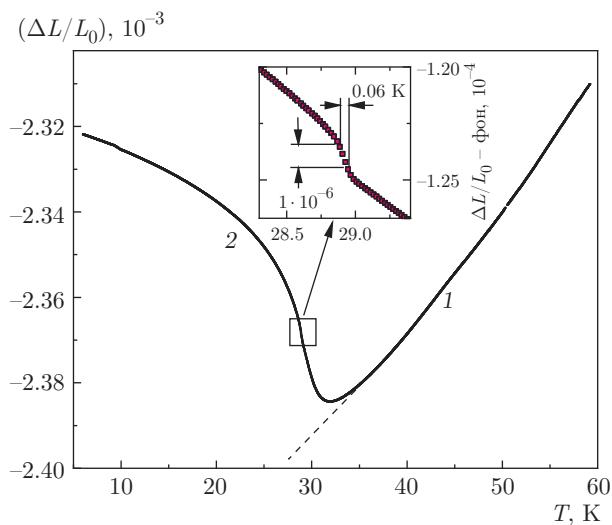


Рис. 6. Зависимость линейного теплового расширения монокристалла MnSi от температуры [14], иллюстрирующая соотношение между объемной аномалией и фазовым переходом первого рода: 1 — нормальная ветвь с положительным температурным расширением; 2 — флюктуационная ветвь с отрицательным температурным расширением

да как перехода непрерывного типа, и, следовательно, фазовый переход первого рода в этой системе происходит по пути, отличному от стандартной модели Ландау. Бак и Иенсен [10] впервые указали на возможную флюктуационную природу фазового перехода первого рода в MnSi. Флюктуационная модель фазового перехода в MnSi развивалась также в работе [11] на основе теории Бразовского [12]. Подчеркнем, что скачки объема и энтропии при фазовом переходе в MnSi чрезвычайно малы и составляют соответственно величины $3 \cdot 10^{-6}$ и $5 \cdot 10^{-4} R$

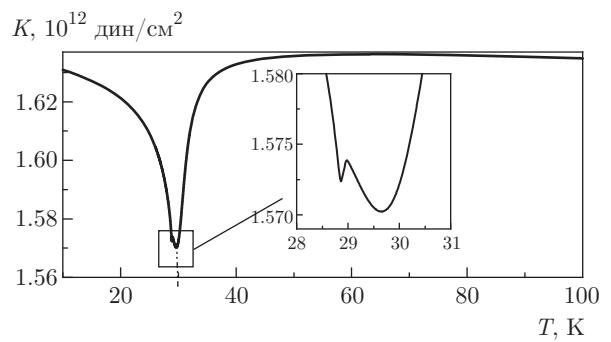


Рис. 7. Поведение модуля объемной упругости $K = (c_{11} + 2c_{12})/3$ при фазовом переходе в MnSi [15]. Фазовому переходу соответствует небольшой острый пик, изображенный на вставке

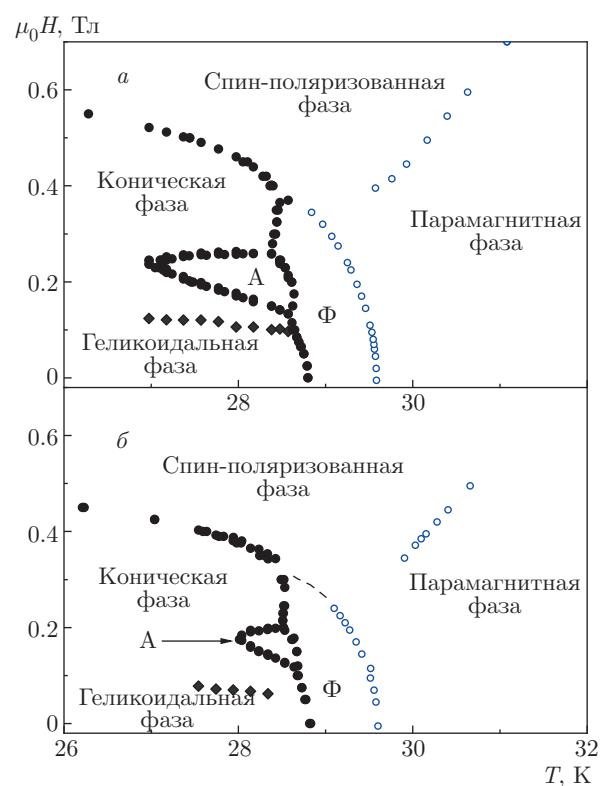


Рис. 8. Магнитная фазовая диаграмма MnSi; *а* и *б* соответствуют различным размагничивающим факторам [15]. А — скирмионный кристалл, Ф — область сильных геликоидальных флюктуаций

[13], где R — универсальная газовая постоянная (см. также рис. 6 и 7).

Наряду с этим необходимо отметить, что, как это следует из рис. 6 и 7, сам фазовый переход представляет собой лишь незначительную деталь глобальной аномалии физических свойств MnSi, возникающей

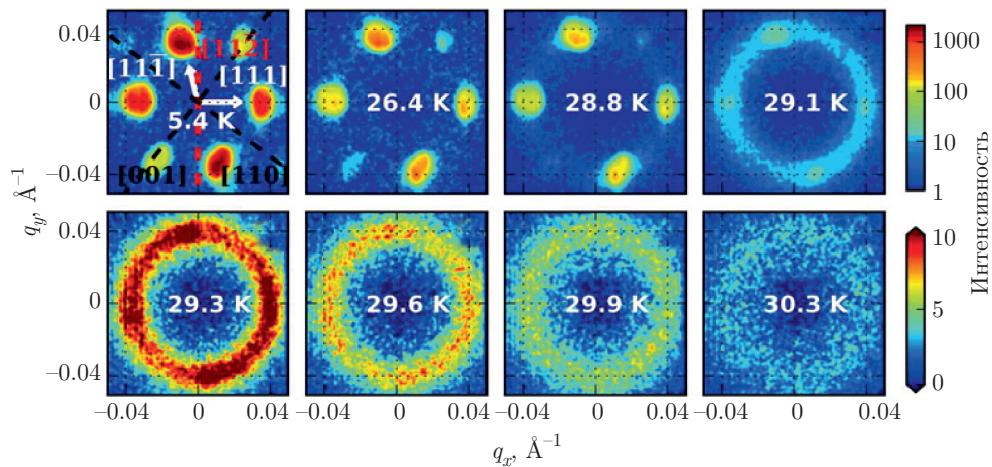


Рис. 9. (В цвете онлайн) Температурная эволюция скирмионного кристалла в MnSi по данным малоуглового рассеяния нейтронов [11]

при спиновом упорядочении и, очевидно, связанной с мощными киральными флюктуациями.

Природа специфической формы фазового перехода в MnSi выявлена в работах [16, 17], посвященных анализу трехмерной решетки спинов классическим методом Монте-Карло. Здесь наряду с ферромагнитным обменным взаимодействием учитывалось анизотропное взаимодействие ДМ. Как оказалось, плечо, или побочный максимум на кривой теплоемкости модельной системы спинов возникает вследствие возмущения ферромагнитного фазового перехода геликоидальными флюктуациями, обусловленными взаимодействием ДМ. Очевидно, что область максимума соответствует взаимодействию двух флюктуирующих параметров порядка, вследствие чего система не может перейти в упорядоченное состояние непрерывным образом. Вместо этого при достаточной интенсивности взаимодействия ДМ в системе возникает фазовый переход первого рода.

3. МАГНИТНАЯ ФАЗОВАЯ ДИАГРАММА MnSi И СКИРМИОНЫ

Магнитное поле обнаруживает новые черты в физике MnSi (рис. 8) и аналогичных соединений. Загадочная фаза А, открытая много лет назад [18], оказалось скирмионным кристаллом, состоящим из упаковки спиновых скирмионов — вихревых структур, существование которых было предсказано в работе [19].

Эволюция гексагонального скирмионного кристалла при повышении температуры по данным ма-

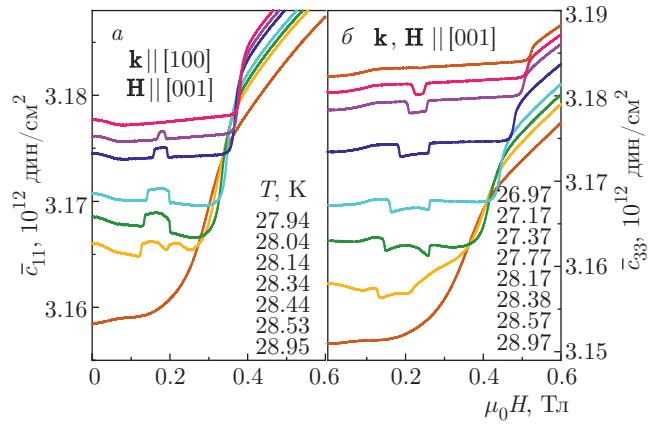


Рис. 10. (В цвете онлайн) Продольные упругие модули MnSi как функции магнитного поля и температуры. Отчетливо наблюдаемые ступенчатые аномалии соответствуют упругим модулям скирмионного кристалла [15]

лоуглового нейтронного рассеяния демонстрируется на рис. 9 [11]. Видно, что скирмионный кристалл плавится при температуре примерно 29.1 К. При дальнейшем повышении температуры формируется флюктуационное кольцо с волновым вектором $q \sim 0.035 \text{ \AA}^{-1}$, соответствующее геликоидальным спиновым флюктуациям, макроскопическим проявлениями которых являются особенности поведения термодинамических и кинетических свойств вещества при температурах несколько выше T_c (см. на рис. 3, побочный максимум или плечо на кривых C_p/T , $-(1/L_0)(dL/dT)$, $d\rho/dT$).

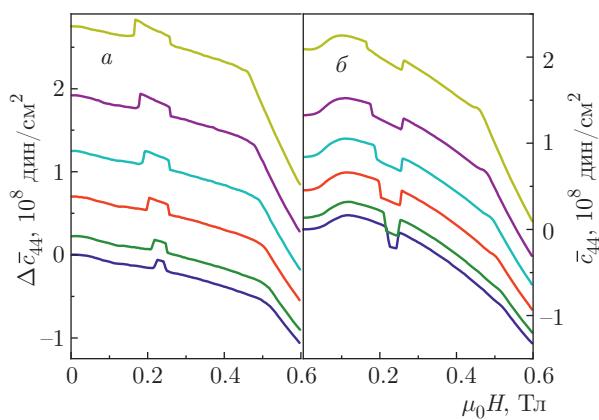


Рис. 11. (В цвете онлайн) Поперечные упругие модули MnSi как функции магнитного поля и температуры, измеренные в направлениях \mathbf{k} , $\mathbf{H} \parallel [001]$ и когда векторы \mathbf{k} , \mathbf{H} направлены под углами 120° (а) и 30° (б) к [100]. Наблюдаемые ступенчатые аномалии соответствуют упругим модулям скирмионного кристалла [15]. Температуры изотерм соответствуют значениям 28.06, 27.84, 27.64, 27.44, 27.24, 27.14 К, считая сверху вниз

Скирмионный кристалл обладает всеми признаками упругой устойчивости кристалла, как это следует из данных ультразвуковых исследований, представленных на рис. 10 и 11 [15].

4. КВАНТОВЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В MnSi

Одна из главных и все еще не решенных проблем физики MnSi связана с природой фазового перехода при $T = 0$. Казалось бы, коль скоро линия фазового перехода пересекает ось давлений при $P \approx 14$ кбар и $T = 0$, то здесь следует ожидать проявления квантовых критических явлений при условии, что фазовый переход является фазовым переходом второго рода. Проблема заключается именно в этом. В работе [20] на основании объемных измерений утверждалось, что магнитный фазовый переход в MnSi при $T = 0$ является фазовым переходом первого рода, что исключает наблюдение критических явлений. Эта точка зрения была оспорена в работе [14], авторы которой заметили, что температурное вырождение флюктуационного минимума (см. рис. 6) может служить некоторой имитацией размытого скачка объема при фазовом переходе. Эта ситуация прекрасно иллюстрируется на рис. 12, где представлены результаты измерения электрического сопротивления MnSi, обусловленного, главным образом, расщеплением носителей на спиновых флюктуациях. Как

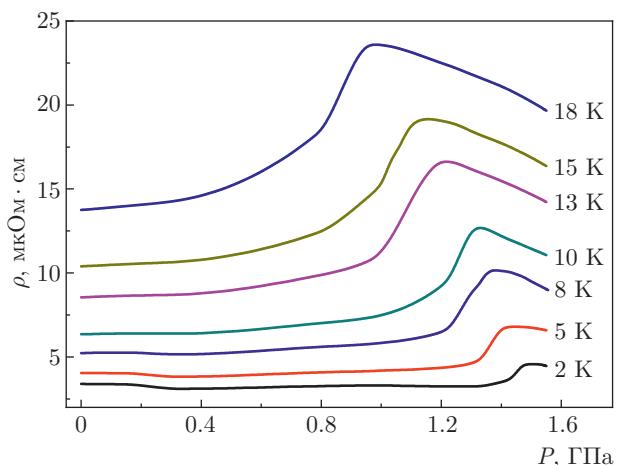


Рис. 12. Изотермы электрического сопротивления MnSi, иллюстрирующие эволюцию флюктуационной области вблизи фазового перехода [14]

видно, вырождение тепловых флюктуаций приводит к квазискакочку при низких температурах.

Продолжая эту тему, укажем, что рис. 13 отчетливо показывает, что резкие пики $d\rho/dT$, идентифицирующие фазовый переход первого рода исчезают с давлением. Непосредственные измерения теплоемкости MnSi при высоких давлениях (рис. 14) подтверждают эту ситуацию.

Все приведенные данные позволили нам предложить фазовую диаграмму MnSi в виде, изображенном на рис. 15, с трикритической точкой при давлении порядка 1 ГПа.

5. КВАНТОВЫЕ КРИТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ В $\text{Mn}_{0.85}\text{Fe}_{0.15}\text{Si}$

Все сказанное в предыдущем разделе может быть справедливо, если эксперименты при высоких давлениях и низких температурах проводятся в безупречных гидростатических условиях. На самом деле это не так. Экспериментальная работа при низких температурах в силу необходимости проводится с использованием твердых сред, передающих давление, среди которых даже наилучшая среда — твердый гелий — обладает конечным модулем сдвига и, следовательно, поддерживает сдвиговые напряжения в среде. Влияние негидростатических напряжений на фазовый переход обычно сводится к его размытию, что, собственно, может происходить и в нашем случае (см. рис. 13, 14).

В этой ситуации полезно использовать химическое «давление» как альтернативный способ

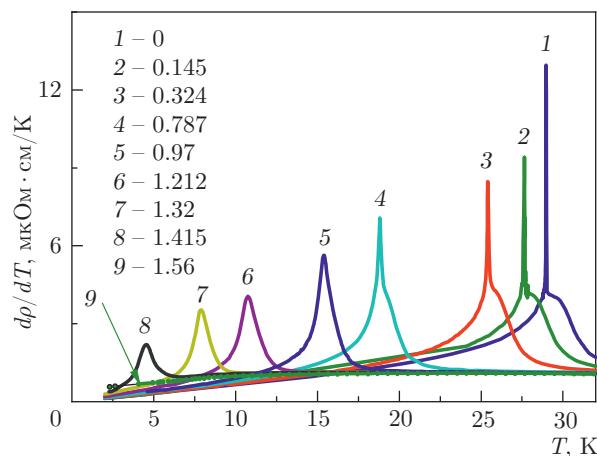


Рис. 13. (В цвете онлайн) Температурная зависимость производной электрического сопротивления по температуре, $d\rho/dT$ [14] (заметим, что эта величина пропорциональна теплоемкости!). Под номерами 1–9 указаны величины давления в ГПа

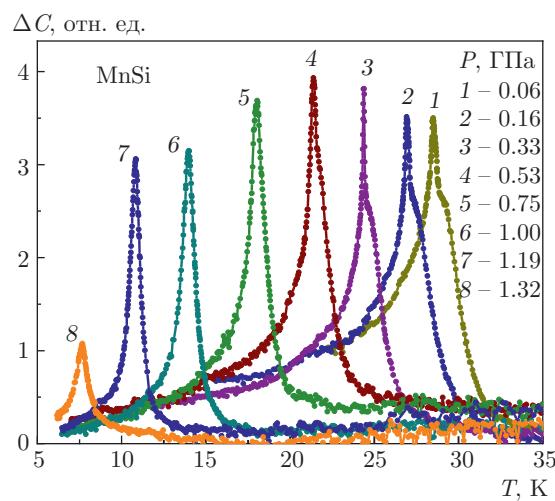


Рис. 14. (В цвете онлайн) Теплоемкость MnSi при различных давлениях [21]

приближения к квантовой критической точке. В данном случае оказалось, что материал состава $Mn_{0.85}Fe_{0.15}Si$ обладает характеристиками, свойственными квантовой критической области (нефермижидкостное поведение электрического сопротивления, логарифмическая расходимость теплоемкости) [22]. Заметим, что параметр решетки $Mn_{0.85}Fe_{0.15}Si$ несколько меньше параметра решетки чистого MnSi. Любопытно, что оценка давления, необходимого для сжатия MnSi с целью достижения равенства параметров решеток, составляет величину 14.6 кбар, что практически точно совпадает с давлением квантового фазового перехода в MnSi (см. рис. 2). Поскольку выводы о квантовой критичности состава $Mn_{0.85}Fe_{0.15}Si$

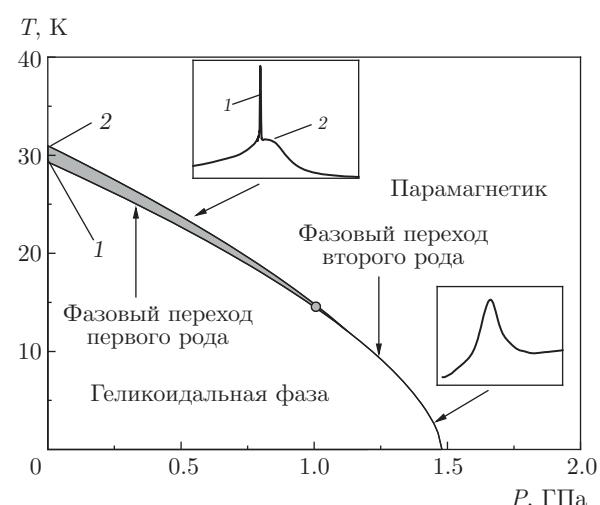


Рис. 15. Гипотетическая фазовая диаграмма MnSi [14]

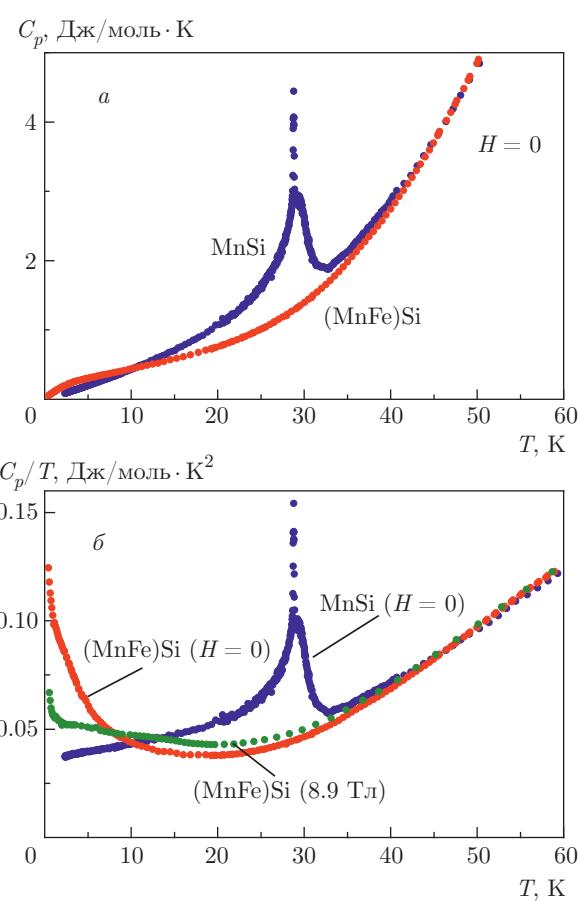


Рис. 16. (В цвете онлайн) Температурные зависимости C_p (а) и C_p/T (б) для MnSi и $Mn_{0.85}Fe_{0.15}Si$ [24]

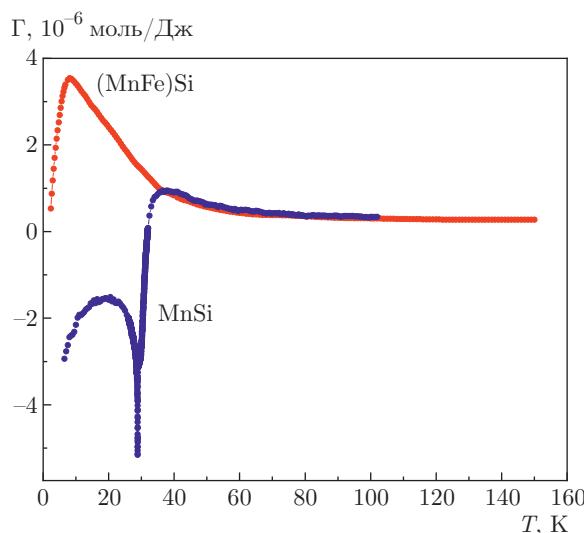


Рис. 17. (В цвете онлайн) Псевдопараметр Грюнайзена $\Gamma = \alpha/C_p$ (α — коэффициент теплового расширения) для $\text{Mn}_{0.85}\text{Fe}_{0.15}\text{Si}$ расходится при $T \rightarrow 0$, это поведение прерывается в связи со специфичным поведением коэффициента теплового расширения [24]

подверглись критике в работе [23], авторы настоящей статьи еще раз обратились к исследованию этого вопроса [24], результаты которого частично отражены на рис. 16, 17.

Как видно из рис. 16, отношение C_p/T для $\text{Mn}_{0.85}\text{Fe}_{0.15}\text{Si}$ расходится с уменьшением температуры в противоположность случаю MnSi . Примечательно, что расходимость подавляется магнитным полем, что и следовало ожидать для случая квантовой критичности.

Поведение параметра Грюнайзена (рис. 17) указывает на исчезновение характерной энергии системы при приближении к квантовой критической точке. В целом, из приведенных экспериментальных данных следует, что состав $\text{Mn}_{0.85}\text{Fe}_{0.15}\text{Si}$ соответствует критической траектории, однако при $T \rightarrow 0$ соответствующая траектория проходит через облако спиновых флуктуаций, что искажает идеальную картину квантового критического поведения.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Как следует из всей совокупности приведенных экспериментальных материалов, исследование фазовых переходов в киральных магнетиках открывает путь к новым физическим эффектам и явлениям (влияние флуктуаций на природу фазового перехода, образование скирмионов, квантовая критичность и т. д.). Однако работа далеко не закончена и

мы вправе ожидать на этом пути новых ярких результатов.

Финансирование. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 18-02-00183-а) и Российского научного фонда (грант № 17-12-01050).

ЛИТЕРАТУРА

1. А. С. Боровик-Романов, М. П. Орлова, ЖЭТФ **31**, 579 (1956).
2. I. Dzyaloshinsky, J. Phys. Chem. Sol. **4**, 241 (1958).
3. T. Moriya, Phys. Rev. **120**, 91 (1960).
4. С. М. Стишов, А. Е. Петрова, УФН **181**, 1157 (2011).
5. С. М. Стишов, А. Е. Петрова, УФН **187**, 1365 (2017).
6. M. Brando, D. Belitz, F. M. Grosche, and T. R. Kirkpatrick, Rev. Mod. Phys. **88**, 025006 (2016).
7. A. Miyake, A. Villaume, Y. Haga, G. Knebel, B. Salce, G. Lapertot, and J. Flouquet, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 044703 (2009).
8. S. M. Stishov, A. E. Petrova, S. Khasanov, G. K. Paranova, A. A. Shikov, J. C. Lashley, D. Wu, and T. A. Lograsso, Phys. Rev. B **76**, 052405 (2007).
9. C. Pappas, E. Lelièvre-Berna, P. Bentley, P. Falus, P. Fouquet, and B. Farago, Phys. Rev. B **83**, 224405 (2011).
10. Per Bak and M. Høgh Jensen, J. Phys. C **13**, L 881 (1980).
11. M. Janoschek, M. Garst, A. Bauer, P. Krautscheid, R. Georgii, P. Böni, and C. Pfleiderer, Phys. Rev. B **87**, 134407 (2013).
12. С. А. Бразовский, ЖЭТФ **68**, 175 (1975).
13. S. M. Stishov, A. E. Petrova, S. Khasanov, G. K. Paranova, A. A. Shikov, J. C. Lashley, D. Wu, and T. A. Lograsso, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 235222 (2008).
14. A. E. Petrova and S. M. Stishov, Phys. Rev. B **86**, 174407 (2012).
15. A. E. Petrova and S. M. Stishov, Phys. Rev. B **91**, 214402 (2015).
16. A. M. Belemuk and S. M. Stishov, Phys. Rev. B **95**, 224433 (2017).

17. А. М. Белемук, С. М. Стишов, ЖЭТФ **158**(2) (2020).
18. Y. Ishikawa and M. Arai, J. Phys. Soc. Jpn. **53**, 2726 (1984).
19. А. Н. Богданов, Д. А. Яблонский, ЖЭТФ **95**, 178 (1989).
20. C. Pfleiderer, P. Böni, T. Keller, U. K. Rössler, and A. Rosch, Science **136**, 1831 (2007).
21. V. A. Sidorov, A. E. Petrova, P. S. Berdonosov, V. A. Dolgikh, and S. M. Stishov, Phys. Rev. B **89**, 100403(R) (2014).
22. P. Coleman, Physica B **259–261**, 353 (1999).
23. T. Goko, C. J. Arguello, A. Hamann, T. Wolf, M. Lee, D. Reznik, A. Maisuradze, R. Khasanov, E. Morenzoni, and Y. J. Uemura, npj Quantum Materials **2**, 44 (2017).
24. A. E. Petrova, S. Yu. Gavrilkin, Dirk Menzel, and S. M. Stishov, Phys. Rev. B **100**, 094403 (2019).