

УДК 537.611.45

©1995

ВЛИЯНИЕ ДАВЛЕНИЯ НА АНТИФЕРРОМАГНИТНЫЙ ПЕРЕХОД В ХРОМЕ, ЛЕГИРОВАННОМ КРЕМНИЕМ*В.А.Вентцель, Е.С.Ицкевич, А.Е.Петрова, А.В.Руднев*

Институт физики высоких давлений им.Л.В.Верещагина,

Троицк, Московская область

Поступила в Редакцию 14 июня 1994 г.

Методом измерения особенности на кривой $R(T)$ исследована зависимость температуры антиферромагнитного фазового перехода от давления. Показано, что сброс давления в камере фиксированного давления при понижении температуры в области промежуточных температур проходит немонотонным образом. Температура перехода линейно понижается с ростом давления со скоростью 325 К/ГПа. Сопоставление с нейтронографическими исследованиями под давлением Эндона и др. показало, что особенность на кривой $R(T)$ связана с переходом в соизмеримую антиферромагнитную фазу и из парамагнитной, и из несоизмеримой антиферромагнитной фазы.

В последнее время вновь возник интерес к магнитным переходам в хроме, легированном примесями различных металлов [1-4], дающими резонансные состояния вблизи уровня Ферми [5,6]. При высоких температурах чистый и легированный хром являются парамагнетиками и при понижении температуры переходят в антиферромагнитное состояние. При дальнейшем понижении температуры происходит переход в антиферромагнитное же состояние с волной спиновой плотности (ВСП) [7], приводящей к несоизмеримым кристаллической и спиновой подрешеткам. Магнитные фазовые переходы могут быть как первого, так и второго рода [1] и проявляются как особенности в поведении электросопротивления $R(T)$ [8], коэффициента теплового расширения [9,10], других термодинамических величин [11], а также проявляются в экспериментах по дифракции нейтронов [12,13]. Что касается вида поверхности Ферми хрома, то она хорошо известна в несоизмеримой фазе [7]. В сплавах хрома при определенных концентрациях примеси реализуется соизмеримая фаза, и в принципе представляло бы несомненный интерес изучение поверхности Ферми в соизмеримой фазе при полном совпадении подрешеток. Поверхность Ферми в соизмеримой фазе была определена из измерений частоты термомагнитных осцилляций только для образцов хрома, легированного 1.76% Mn [14].

Помимо интереса к фазовым диаграммам в координатах $T-x$ (температура–концентрация примеси) не меньший интерес представляют и фазовые диаграммы в плоскости $T-P$ (температура–давление) при фиксированной концентрации примеси, поскольку давление, так же как и введение примесей, приводит к изменению расстояния между атомами в решетке.

Целью настоящей работы было измерение зависимости температуры Нееля от давления до возможно более низких температур для образцов $\text{Cr} + 1.3\% \text{Si}$, а также попытка наблюдения эффекта де Гаазаван Альфена у монокристаллов хрома, легированного германием.

Интерес к хрому, легированному кремнием, обусловлен тем, что при концентрации примеси 1.0–1.1 at.% имеется тройная точка на фазовой диаграмме $T-x$. При меньшей концентрации имеет место переход из парамагнитной фазы (P) в несоизмеримую антиферромагнитную фазу (AF_1), при более высокой концентрации Si переход в точке Нееля идет в соизмеримую AF_0 фазу, а затем при дальнейшем понижении температуры происходит переход из AF_0 в AF_1 -фазу. Установлено также, что в фазе AF_1 при температуре 100–120 К происходит переход от поперечной поляризации ВСП к продольной при более низких температурах.

Исследования образцов с содержанием 1.4% Si, проведенные Эндонном и др. [13] по дифракции нейтронов под давлением, показали, что фазы AF_0 и AF_1 сосуществуют в широком диапазоне температур. При нормальном давлении переход $P-AF_0$ происходит при температуре около 240 К, а затем при температуре ниже 150 К наряду с брэгговским пиком (1,0,0) появляются дополнительные боковые пики, указывающие на наличие несоизмеримой фазы. Под давлением выше 0.2 GPa переход в точке Нееля происходит в несоизмеримую фазу, а затем проявляется пик от соизмеримой фазы, амплитуда которого максимальна при температуре около 150 К и быстро уменьшается по мере приближения температуры к 100 К. Амплитуда пика от фазы AF_1 при всех давлениях достигает насыщения при температуре около 100 К и не изменяется при дальнейшем охлаждении. Отличие величины волнового вектора ВСП Q от вектора обратной решетки Q_0 выражается в виде $Q = Q_0(1 - \delta)$, и при нормальном давлении абсолютная величина δ возрастает при понижении температуры. Под давлением δ вначале уменьшается, а затем вновь растет по мере уменьшения температуры. Другие исследования под давлением образцов хрома с примесью Si проводились Джайараманом и др. [15] и Хохаймером и Мюнхом [2] методом измерения сопротивления; во всех этих работах минимальная температура, при которой проводились эксперименты под давлением, не опускалась ниже 100 К.

В настоящей работе магнитный фазовый переход также измерялся по зависимости $R(T)$. Электросопротивление образца измерялось по четырехконтактной схеме на постоянном токе, напряжение с потенциальных контактов подавалось непосредственно на вход нановольтметра В2-38 и через канал общего пользования в компьютер, таким же образом записывался и ток через образец. Температура регистрировалась термопарой медь–медь с примесью железа и измерялась с помощью другого нановольтметра. Холодный спай термопары располагался в массивном медном стакане, который был в хорошем тепловом контакте с камерой высокого давления.

Для проведения экспериментов под давлением использовалась камера фиксированного давления [16]. Такого вида камеры в основном предназначены для работы при гелиевых температурах и редко используются при малых давлениях. Поэтому необходимо остановиться на особенностях использования камеры фиксированного давления в области промежуточных температур и начальных давлений. Давление в такой камере создается и фиксируется при комнатной температуре, а затем камера охлаждается до низких температур. В процессе охлаждения происходит растянутое по температуре затвердевание среды, передающей давление, а также термическое уменьшение объема среды и корпуса камеры. Эти процессы приводят к уменьшению давления в камере, поскольку термический коэффициент сжатия для органической жидкости значительно больше, чем для металла. Принято считать, что давление линейно уменьшается примерно на 0.3 GPa при охлаждении до температуры выше азотной, а затем остается постоянным. Сброс давления на 0.3 GPa происходит при этом независимо от первоначального давления. Такое утверждение основано на результатах работы [17], в которой было показано, что давления при температурах 4.2, 20 и 77 K совпадают при одном и том же исходном давлении, созданном при комнатной температуре. При таком подходе открытым остается вопрос о величине температуры T , ниже которой давление можно считать постоянным.

В настоящей работе давление измерялось манганиновым манометром электросопротивления при заданной геометрии камеры и скорости ее охлаждения до 4.2 K с использованием в качестве среды, передающей давление, смеси трансформаторного масла и керосина в отношении 1:1. Предварительно при $P = 0$ измерялась зависимость сопротивления манометра $R(T, 0)$, а затем измерялась зависимость $R(T, P)$ при давлении P , величина которого была зафиксирована при комнатной температуре. Давление при любой температуре T определялось по обычной зависимости

$$P(\text{kbar}) = \frac{10^3}{2.48} \frac{R(T, P) - R(T, 0)}{R(T, 0)}.$$

Барический коэффициент при всех температурах принимался равным 2.48, поскольку отличие его от низкотемпературного значения 2.52 [17] невелико. Полученная таким образом серия кривых $P(T)$ изображена на рис. 1.

Как видно из этого рисунка, давление убывает до температур порядка азотных, но при этом линейный ход имеет место только до 200 K, затем сброс давления замедляется, после 150 K давление уменьшается более резко, достигает минимума в районе 100–120 K, а затем возрастает и остается постоянным при дальнейшем понижении температуры. Минимум на кривой $P(T)$ вышоложивается по мере увеличения начального давления. Абсолютная величина сброса давления при $T = 4.2$ K при всех давлениях составляет примерно 0.3 GPa. Более сложный по сравнению с линейно-постоянным вид зависимости $P(T)$ связан, по-видимому, со сложным поведением сжимаемости и коэффициента теплового расширения смеси, передающей давление.

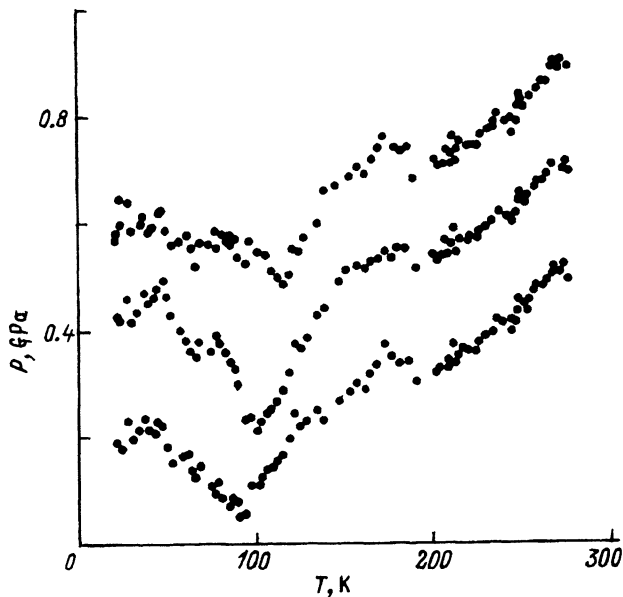


Рис. 1. Зависимость давления P в камере фиксированного давления от температуры T .

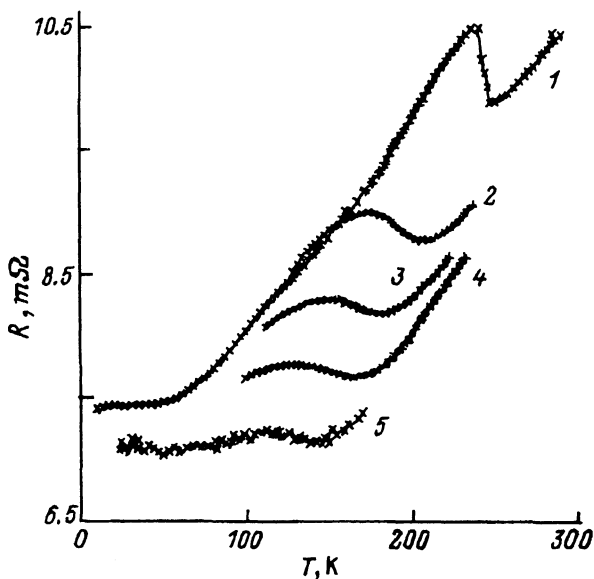


Рис. 2. Зависимость от температуры электросопротивления образца $\text{St} + 1.3\% \text{Si}$ при различных начальных давлениях: 0 (1), 0.35 (2), 0.51 (3), 0.71 (4), 0.87 GPa (5).

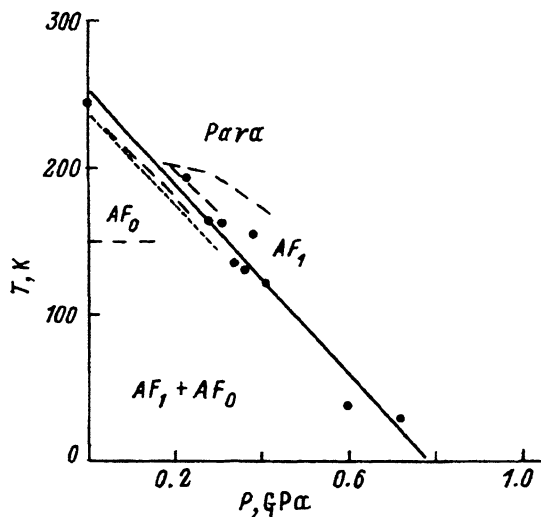


Рис. 3. Температура, при которой наблюдается особенность на кривой $R(T)$ (черные точки), в зависимости от измеренного при этой температуре давления.

Сплошная линия — усреднение по методу наименьших квадратов, короткая штриховая — данные работы [15], длинные штриховые линии — данные работы [13].

Фазовый переход измерялся по характерному изгибу на кривой зависимости $R(T)$, точка Нееля T_N соответствует при этом минимуму на кривой dR/dT [1]. Вид некоторых экспериментальных кривых $R(T)$ для одного из образцов $\text{Cr} + 1.3\% \text{Si}$ представлен на рис. 2. Давление, соответствующее вычисленному значению T_N , определялось как из кривых $P(T)$, представленных на рис. 1, так и из расчета для линейно-постоянной зависимости $P(T)$. Полученная таким образом зависимость температуры Нееля от давления представлена на рис. 3. Вычисленные и полученные из эксперимента давления практически совпадают во всем диапазоне температур, за исключением области вблизи 100–150 К, соответствующей особенности на кривых, представленных на рис. 1. При этом отклонение точек от линейной зависимости $T_N(P)$ минимально при использовании значений P , полученных из эксперимента, что свидетельствует, по-видимому, о том, что небольшой провал на кривой $P(T)$ в районе температур 100–150 К действительно имеет место.

На рис. 3 представлены как данные настоящей работы, так и данные работ [13] и [15], в которых проводились измерения под давлением для образцов с содержанием 1.4 at.% Si. Измеренное нами уменьшение T_N с давлением происходит линейно со скоростью 325 К/ГПа. В работе Джайарамана и др. [15] переход в антиферромагнитное состояние также измерялся по сопротивлению, и полученный ими наклон dT_N/dP имеет близкое значение (30 К/ГПа). Эти данные изображены на рис. 3 штриховой линией (короткие штрихи). В работе Эндона и др. [13] измерялась дифракция нейтронов и результаты этих измерений представлены на рис. 3 пунктирными линиями с длинными штрихами. Самая верхняя линия соответствует переходу $P-AF_1$ и лежит значительно выше сплошной линии, проведенной нами, и пунктирной линии Джайарамана и др. Ниже и параллельно нашим данным идет линия, соответствующая появлению смеси фаз AF_1 и AF_0 , и еще чуть ниже линия, соответствующая полному переходу в фазу AF_0 . Параллельно оси абсцисс проходит линия, соответствующая переходу из соизме-

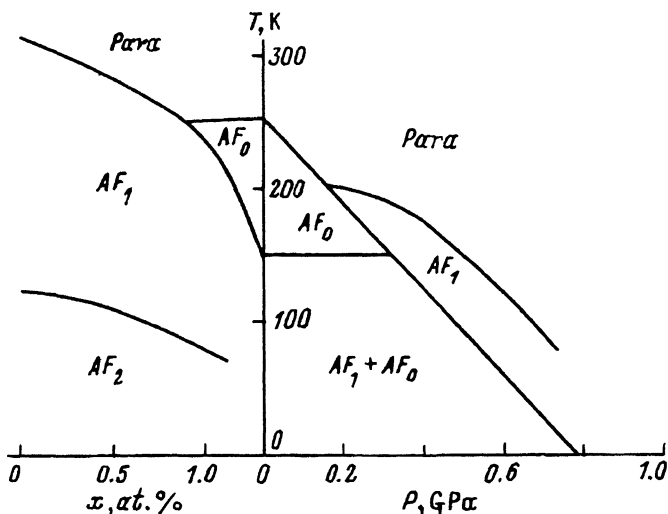


Рис. 4. Предлагаемый вид фазовой диаграммы хрома с примесью кремния. Слева фрагмент $T-x$ -диаграммы из работы [4], справа $P-T$ -диаграмма для $\text{Cr} + 1.3\% \text{Si}$ по нашим результатам и данным работ [13,15].

римой фазы AF_0 в смесь соизмеримой и несоизмеримой фаз AF_1 при $T = 150 \text{ K}$.

Самый очевидный вывод, который можно сделать из представленных на рис. 3 данных, состоит в том, что наблюдаемый по сопротивлению переход при давлении от 0.2 до 0.35 GPa соответствует переходу не из парамагнитной фазы, а переходу из несоизмеримой фазы AF_1 в соизмеримую AF_0 . При давлениях выше 0.35 GPa под сплошной линией равновесия фаз лежит смесь AF_1 и AF_0 , а выше этой линии расположена, по-видимому, чистая фаза AF_1 . Таким образом, из наших измерений особенностей на кривой $R(T)$ можно сделать заключение, что эта особенность проявляется всякий раз при возникновении соизмеримой антиферромагнитной фазы. Действительно, при $P = 0$ наблюдается переход $P-AF_0$, при давлениях выше 0.2 GPa переход связан с появлением чистой фазы AF_0 или с ее присутствием в смеси фаз $AF_1 + AF_0$. Характер фазовой диаграммы не меняется до самых низких температур.

На основании литературных данных [4,13,15] и наших результатов можно предположить вид фазовой диаграммы в $P-T$ -плоскости для хрома с содержанием 1.3% Si. На рис.4 эта диаграмма совмещена с частью диаграммы в $x-T$ -плоскости, низкотемпературная фаза AF_2 на этом рисунке отличается от фазы AF_1 поляризацией ВСП. Так же как и при концентрации Si порядка 1%, под давлением порядка 1.5 kbar имеется тройная точка на фазовой $P-T$ -диаграмме, в которой сосуществуют фазы P , AF_0 и AF_1 , а под давлением от 0.15 до 0.3 GPa имеется участок многозначного перехода по температуре. Область существования соизмеримой фазы линейно уменьшается под давлением и присутствие фазы AF_0 при самых низких температурах не наблюдается, по-видимому, при давлениях выше 0.8 GPa, при этом область существования чистой фазы AF_0 ограничена температурами выше 150 K. Несо-

измеримая фаза AF_1 при давлениях от 0.15 до 0.3 GPa полностью переходит в соизмеримую фазу, а при более высоких давлениях переход происходит частично. Выше 1 GPa образец, по-видимому, до самых низких температур должен оставаться парамагнитным.

В работах [1,3,4] проводились измерения электросопротивления и теплового расширения образцов с различным содержанием примесей и было показано, что фазовому переходу первого рода соответствует как скачок линейных размеров, так и резкая особенность на кривой $R(T)$, а при фазовом переходе второго рода наблюдаются излом на зависимости линейных размеров и очень слабая особенность на кривой сопротивления от температуры. Из данных, представленных на рис. 2, видно, что резкая особенность в поведении сопротивления наблюдается на четырех верхних кривых и соответствует давлениям ниже 0.4 GPa, а нижняя кривая (переход соответствует $P = 0.41$ GPa и $T = 121$ K) имеет менее выраженную особенность. При более высоких давлениях и соответственно более низких температурах особенность на кривой $R(T)$ становится еще более слабой и различить ее удастся только путем дифференцирования этой кривой. Отсюда напрашивается вывод, что при давлениях ниже 0.4 GPa наблюдается фазовый переход первого рода, а при более высоких давлениях — фазовый переход второго рода. При давлениях ниже 0.4 GPa, так же как и в случае без давления при концентрации примеси Si от 1 до 3 at.%, переход идет в чистую AF_0 -фазу, и это подтверждает вывод работы [1] о первом роде фазового перехода.

Помимо образцов $Cr + 1.3\% Si$ были исследованы также монокристаллические образцы хрома, легированного германием. Полученная из температурной зависимости сопротивления температура Нееля для образцов с содержанием Ge 0.4, 0.7 и 1.0% дала прекрасное совпадение с данными работы [2]. Менее удачной оказалась попытка измерить на этих образцах эффект де Гааза-ван Альфена, не удалось наблюдать никаких осцилляций магнитного момента при максимальной чувствительности установки, на два порядка превышающей предел, на котором надежно наблюдались осцилляции для чистого хрома. Отсутствие осцилляций связано, по-видимому, с сильным резонансным рассеянием электронов и, возможно, с несовершенством монокристаллов. Для этих образцов отношение сопротивления при комнатной температуре к сопротивлению при $T = 4.2$ K оказалось очень малым. Так, если для монокристалла чистого хрома это отношение равнялось 95.5, то для легированных монокристаллов оно составляло 2–3. Отжиг в вакууме при температуре 1200 K в течение 8 часов не привел к желаемому результату и даже снизил это отношение для образца с содержанием Ge 1% с 7 до 2.

Авторы считают своим приятным долгом выразить глубокую благодарность В.Ю.Галкину и Х.Д.Хохеймеру за любезно предоставленные ими образцы и Э.Фоссету за полезную дискуссию.

Работа получила финансовую поддержку Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 93-02-14235).

Список литературы

- [1] Галкин В.Ю., Тугушев В.В., Тугушева Т.Е. // ФТТ. 1991. Т. 33. № 1. С. 9-18.
- [2] Hochheimer H.D., Munch R. // Phil. Mag. B. 1991. V. 63. N 4. P. 979-992.
- [3] Galkin V.Yu., Fawcett E. // J. Magn. Magn. Mater. 1993. V. 119. P. 321-328.
- [4] Fawcett E., Galkin V.Yu. // J. Magn. Magn. Mater. 1993. V. 119. P. 329-338.
- [5] Волков Б.А., Тугушев В.В. // ФТТ. 1984. Т. 26. No 8. С. 2428-2438.
- [6] Fawcett E., Galkin V.Yu. // J. Phys.: Condens. Mater. 1991. V. 3. P. 7167-7178.
- [7] Куликов Н.И., Тугушев В.В. // УФН. 1984. Т. 144. № 4. С. 644-680.
- [8] Araj S., Katzenmeyer Wm.E. // J. Phys. Soc. Jap. 1967. V. 23. N 1. P. 123-135.
- [9] Suzuki T. // J. Phys. Soc. Jap. 1977. V. 43. N 3. P. 869-874.
- [10] Alberts H.L., Lourens J.A.J. // J. Phys. F: Met. Phys. 1988. V. 18. N 1. P. 123-135.
- [11] Benediktsson G., Hedman L., Astrom H.U., Rao K.V. // J. Phys. F: Met. Phys. 1982. V. 12. N 7. P. 1439-1452.
- [12] Cable J.W. // J. Magn. Magn. Mater. 1977. V. 5. N 1. P. 112-115.
- [13] Endon Y., Mizuki J., Ishikawa Y. // J. Phys. Soc. Jap. 1982. V. 51. N 9. P. 2826-2832.
- [14] Graebner J.E. // Proc. 12th Int. Conf. Low Temp. Phys., Kyoto, 1970. Tokyo, 1971. P. 601-603.
- [15] Jayaraman A., Maines R.G., Rao K.V., Araj S. // Phys. Rev. Lett. 1976. V. 37. N 14. P. 926-928.
- [16] Ицкевич Е.С. // ПТЭ. 1963. № 4. С. 148-151.
- [17] Ицкевич Е.С., Вороновский А.Н., Гаврилов А.Ф., Сухопаров В.А. // ПТЭ. 1966. № 6. С. 161-164.