

## Магнитосопротивление полупроводникового шпинелида $\text{Cu}_{0.625}\text{Ga}_{0.375}\text{Cr}_2\text{Se}_4$ с низкотемпературным переходом дальний магнитный порядок—спиновое стекло

© Л.И. Королева, А.И. Абрамович

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
119899 Москва, Россия

(Поступила в Редакцию 15 сентября 1997 г.)

В области сильных магнитных полей изучена зависимость магнитосопротивления  $\Delta\rho/\rho$  от квадрата намагниченности  $\sigma^2$  полупроводникового шпинелида  $\text{Cu}_{0.625}\text{Ga}_{0.375}\text{Cr}_2\text{Se}_4$ , обладающего низкотемпературным переходом дальний магнитный порядок (ДМП) — спиновое стекло (СС). Показано, что при температуре замораживания  $T_f$  происходит изменение наклона зависимостей  $\Delta\rho/\rho(\sigma^2)$ , причем в области температур ниже  $T_f$  он примерно в 2 раза меньше, чем при  $T > T_f$ . Этот факт в сочетании с ранее обнаруженным отсутствием зависимости температуры замораживания от частоты переменного магнитного поля, в котором она измерялась, указывает на то, что спин-стеклообразная фаза состоит из спинов отдельных ионов  $\text{Cr}^{3+}$ , и переход СС–ДМП является фазовым.

В настоящее время одним из основных вопросов физики спинового стекла (СС) является вопрос о существовании фазового перехода СС–парамагнетизм (ПМ) и СС–дальний магнитный порядок (ДМП). Исследованию перехода СС–ПМ посвящено большое количество работ, и гораздо менее изучен переход СС–ДМП. Хорошо известно, что в магнетиках магнитосопротивление (МС) пропорционально квадрату намагниченности  $\sigma$ ; наклон кривых  $\Delta\rho/\rho(\sigma^2)$  в области сильных полей характеризует интенсивность парапроцесса. Для выяснения природы СС-состояния интересно сравнить указанные наклоны в образцах с низкотемпературным переходом ДМП–СС в различных температурных областях: в области с ДМП и в области с СС-состоянием. Если эти наклоны близки по величине, то СС-фаза, по всей видимости, представляет собой систему кластеров, внутри которых тот же магнитный порядок, что и в фазе с ДМП. Если же эти наклоны существенно различаются, то можно полагать, что СС-фаза существенно отличается от фазы с ДМП. Можно предположить несколько вариантов структуры СС-фазы: 1) она состоит из кластеров с тем же магнитным порядком, что и фаза с ДМП, других носителей магнитных моментов, например спинов отдельных ионов, и кластеров с иным магнитным порядком, чем фаза с ДМП; 2) СС-фаза состоит из кластеров с иным магнитным порядком, чем фаза с ДМП; 3) СС-фаза состоит из кластеров с иным магнитным порядком, чем фаза с ДМП, и отдельных магнитных ионов; 4) СС-фаза состоит из отдельных магнитных ионов. В последнем случае следует ожидать отсутствия частотной зависимости температуры замораживания.

Ранее нами были изучены магнитные и электрические свойства системы твердых растворов  $x\text{CuCr}_2\text{Se}_4 - (1-x) \times \text{Cu}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Cr}_2\text{Se}_4$  [1,2]. Оказалось, что инфракрасные спектры составов с  $0 \leq x \leq 0.2$  содержат семь основных полос поглощения, что согласуется с фактор-групповым анализом для соединений с пространственной группой  $F\bar{4}3m$ , в то время как в инфракрасных спектрах нормальной шпинели ( $Fd\bar{3}m$ ) содержатся лишь четыре

полосы. Этот факт однозначно указывает на наличие упорядочения по типу 1:1 в тетраэдрической подрешетке указанных составов. Поэтому правильнее называть данные составы шпинелидами (шпинелеподобными). Показано, что составы с  $0 \leq x \leq 0.1$  являются невырожденными полупроводниками и обладают свойствами, характерными для СС. Их МС изотропно, отрицательно и очень велико ( $\sim 98\%$  в поле 40 кОе). У составов с  $0.1 < x \leq 0.2$  наблюдается низкотемпературный переход ДМП–СС, который сопровождается вырождением полупроводника. Оказалось, что у этих составов температура замораживания, определенная как температура начала резкого спада на температурной зависимости начальной восприимчивости, измеренной в переменном магнитном поле с частотой от 0.2 Нз до 8 кНз, не зависит от частоты измерения. Немного ниже нее наблюдался резкий минимум отрицательного изотропного МС, абсолютная величина которого достигала  $\sim 6\%$  в поле 40 кОе. Например, у состава с  $x = 0.125$   $T_f = 10.5$  К, а минимум МС наблюдался при  $T = 6.1$  К. Эти факты свидетельствуют в пользу существования

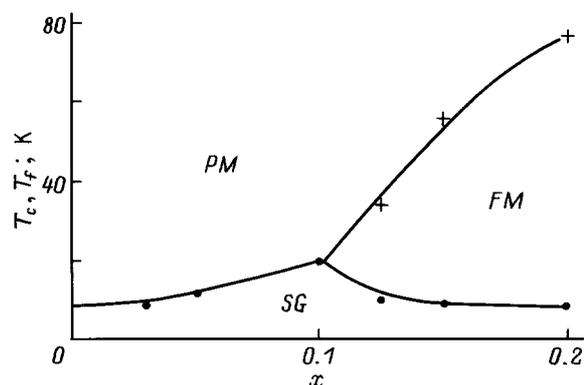
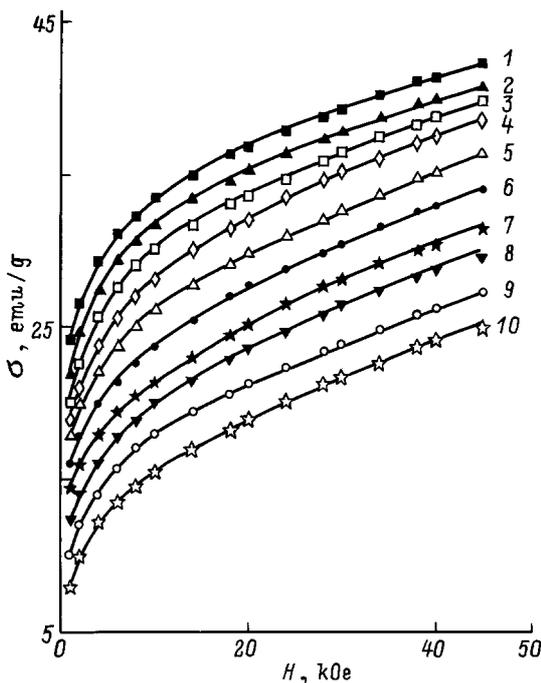


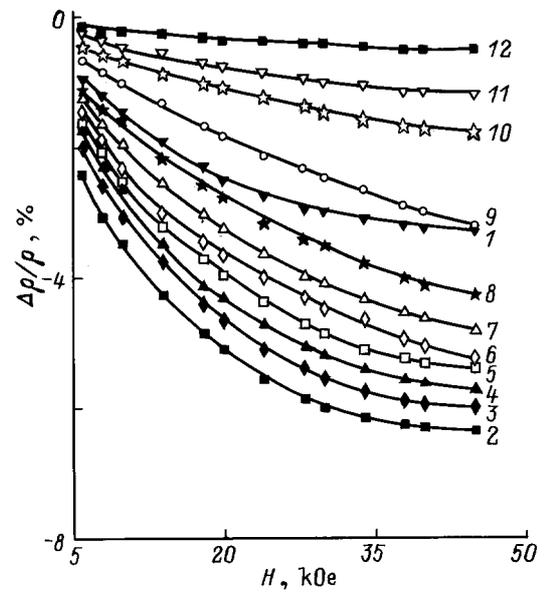
Рис. 1. Магнитная фазовая диаграмма системы  $x\text{CuCr}_2\text{Se}_4 - (1-x)\text{Cu}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Cr}_2\text{Se}_4$ . PM — парамагнитная, FM — ферромагнитная, SG — спин-стеклообразная фаза.

фазового перехода СС–ДМП при температуре замораживания  $T_f$ . Составы с  $x \geq 0.6$  являются металлическими ферромагнетиками. Таким образом, в системе твердых растворов  $x\text{CuCr}_2\text{Se}_4 - (1-x)\text{Cu}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Cr}_2\text{Se}_4$  нами наблюдался концентрационный переход от СС-состояния к ферромагнетизму через смешанное состояние (спин-стеклообразное при низких температурах и состояние с ДМП при больших температурах), который сопровождался изменением проводимости от полупроводниковой к металлической. На рис. 1 показана магнитная фазовая диаграмма исследованной системы. Таким образом, в этой системе составы со смешанным состоянием являются удобным объектом для проверки приведенной выше гипотезы.

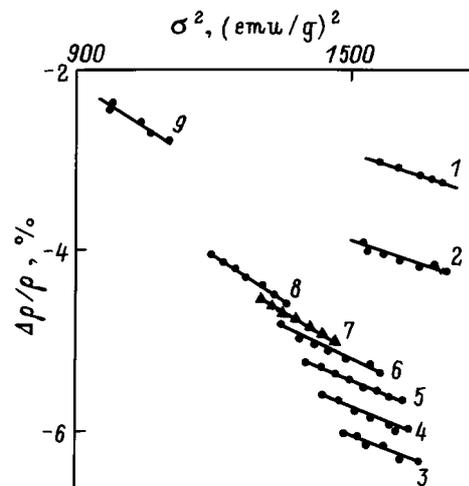
В данной работе изучена зависимость МС от квадрата намагниченности  $\Delta\rho/\rho(\sigma^2)$  для состава  $\text{Cu}_{0.625}\text{Ga}_{0.375}\text{Cr}_2\text{Se}_4$  с низкотемпературным переходом ДМП–СС. На рис. 2 представлены изотермы намагниченности данного состава как выше, так и ниже  $T_f$ . Видно, что они не насыщаются в полях вплоть до 45 кОе. На рис. 3 представлены изотермы магнитосопротивления этого же состава в полях  $H \leq 45$  кОе в той же температурной области. Как видно из рис. 3, кривые  $\Delta\rho/\rho(H)$  далеки от насыщения. В области сильных полей (30–45 кОе) мы построили зависимости  $\Delta\rho/\rho(\sigma^2)$  для различных температур вблизи  $T_f = 10.5$  К. Эти зависимости представлены на рис. 4. Из этого рисунка видно, что при переходе через температуру замораживания наклон данных зависимостей, представляющих собой прямые линии, изменяется, а именно в области температур выше  $T_f$  он примерно в 2 раза больше, чем при



**Рис. 2.** Изотермы намагниченности для различных температур.  $T$  (К): 1 — 4.8, 2 — 7.5, 3 — 11, 4 — 13.4, 5 — 18, 6 — 23.2, 7 — 28, 8 — 32.2, 9 — 38.5, 10 — 48.

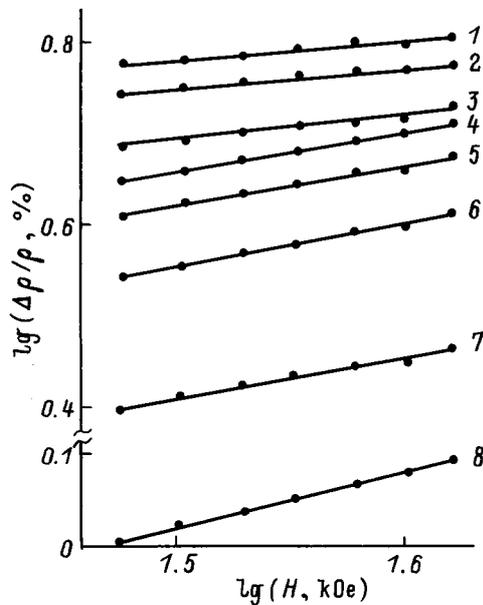


**Рис. 3.** Изотермы магнитосопротивления для различных температур.  $T$  (К): 1 — 4.2, 2 — 6.1, 3 — 7.4, 4 — 8.6, 5 — 10.3, 6 — 12.2, 7 — 15, 8 — 17.7, 9 — 22, 10 — 26.7, 11 — 31.5, 12 — 41.



**Рис. 4.** Зависимость магнитосопротивления от квадрата намагниченности для различных температур в районе  $T_f$ .  $T$  (К): 1 — 4.2, 2 — 5.1, 3 — 6.1, 4 — 7.4, 5 — 8.6, 6 — 10.3, 7 — 12.2, 8 — 15, 9 — 22.

$T < T_f$ . Этот факт свидетельствует о том, что интенсивность парапроцесса выше температуры замораживания увеличивается, что, по-видимому, связано с существенной перестройкой спиновой системы в точке  $T_f$ . Это еще один факт, подтверждающий наличие фазового перехода СС–ДМП при  $T_f$ . Отсутствие частотной зависимости  $T_f$  в сочетании с резким различием наклона зависимостей  $\Delta\rho/\rho(\sigma^2)$  в СС-фазе и фазе с ДМП указывает на то, что структура СС-фазы соответствует четвертому варианту, приведенному выше, а именно состоит из отдельных магнитных ионов.



**Рис. 5.** Зависимость  $\lg \Delta\rho/\rho$  от  $\lg H$  для различных температур.  $T$  (К): 1 — 6.1, 2 — 7.4, 3 — 10.3, 4 — 12.2, 5 — 15, 6 — 17.7, 7 — 22, 8 — 31.5.

Представляет интерес и зависимость МС этого состава от величины магнитного поля  $H$ . Теоретическое описание зависимости  $\Delta\rho/\rho(H)$  СС и систем с низкотемпературным переходом от СС-состояния к состоянию с ДМП в настоящее время отсутствует. Для металлических ферромагнетиков на основании общих термодинамических соображений и при учете свойств фазового перехода второго рода в [3,4] было показано, что в точке Кюри  $T_c$   $\Delta\rho/\rho \sim H^{2/3}$ , для  $T \gg T_c$   $\Delta\rho/\rho \sim H^2$ , а в районе  $T < T_c$  в области парапроцесса  $\Delta\rho/\rho \sim H$ . Оказалось, что эти соотношения справедливы и для ферритов [5]. На рис. 5 в двойном логарифмическом масштабе представлены зависимости  $\Delta\rho/\rho(H)$  в сильных магнитных полях в области температур 6.1–38.5 К ( $T_c$  рассматриваемого состава равна 34 К). Видно, что экспериментальные точки удовлетворительно ложатся на прямые линии. Из наклона этих линий были получены следующие соотношения: при  $T \approx T_c$   $\Delta\rho/\rho \sim H^{0.6}$ , при  $T > T_c$   $\Delta\rho/\rho \sim H^{1.5}$ , при  $T_f < T < T_c$   $\Delta\rho/\rho \sim H^{0.4}$ , при  $T < T_f$   $\Delta\rho/\rho \sim H^{0.2}$ . Сравнение полученных соотношений с приведенными выше для ферромагнетиков и ферритов показывает, что МС слабее зависит от поля во всех областях и, в особенности, в области СС и области с ДМП. Как указывалось в [1], в исследуемом составе области с СС-состоянием расположены внутри бесконечного ферромагнитного кластера. По-видимому, они занимают значительный объем образца, что и приводит к более слабой, чем для чистого ферромагнетика, зависимости  $\Delta\rho/\rho(H)$  во всех фазах.

Таким образом, обнаруженное нами увеличение интенсивности парапроцесса при переходе от СС-фазы к фазе с ДМП в совокупности с полученными ранее фактами (наличием максимума на температурной зависимости абсолютной величины МС в районе  $T_f$ , изменением энергии активации проводимости при этой температуре и независимостью самой температуры замораживания от частоты измерения [1,2]) позволяет сделать вывод о том, что в точке  $T_f$  происходит термодинамический фазовый переход, а СС-фаза состоит из спинов отдельных ионов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (тема 96-02-19684а).

### Список литературы

- [1] Л.И. Королева, А.И. Кузьминых. ЖЭТФ **84**, 5, 1882 (1983).
- [2] Л.И. Королева, А.И. Кузьминых. ФТТ **26**, 1, 56 (1984).
- [3] К.П. Белов. Упругие, тепловые и электрические явления в ферромагнетиках. М. (1957). 279 с.
- [4] К.П. Белов. Магнитные превращения. М. (1959). 259 с.
- [5] С. Крупичка. Физика ферритов и родственных им магнитных окислов. М. (1976). 504 с.