Письма в ЖЭТФ, том 81, вып. 6, с. 356 – 359 © 2005 г. 25 марта

Влияние спинового ближнего порядка на электронный транспорт и рассеяние нейтронов в аморфных сплавах Gd_xSi_{1-x}

Н. К. Чумаков[1], *В. В. Тугушев, С. В. Гуденко, О. А. Николаева, В. Н. Лазуков, И. Н. Гончаренко, П. А. Алексеев*

Российский научный центр "Курчатовский институт", 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 февраля 2005 г.

Получены прямые экспериментальные доказательства существования ближнего ферромагнитного (ФМ) порядка в сплавах Gd_xSi_{1-x}. Наряду со стандартными магнитотранспортными измерениями используется "локальный" экспериментальный метод – упругое рассеяние тепловых нейтронов на магнитном моменте Gd. Результаты измерений позволяют утверждать, что ближний ФМ порядок формируется в нанокластерах с повышенным содержанием ионов Gd. Мы полагаем, что аморфный сплав Gd_xSi_{1-x} представляет собой новый магнитный материал, обладающий уникальными свойствами, характерными как для сильно-неоднородных сплавов, так и для нанокомпозитных соединений.

PACS: 72.15.Gd, 75.25.+z, 75.47.De, 75.50.−y

1. Введение. Аморфные сплавы типа Gd_xSi_{1-x} $(0.1 < x < 0.2)$ стали в последние годы объектом интенсивного изучения и обсуждения. При изменении температуры и напряженности магнитного поля в указанных сплавах происходят электронные и магнитные фазовые превращения, а также наблюдается гигантское отрицательное магнетосопротивление (ОМС). Стандартный взгляд на эти материалы как на полностью неупорядоченные магнитные полупроводники оказался несостоятельным при попытке объяснить аномалии их транспортных и магнитных свойств в широком интервале температур и магнитных полей.

Из экспериментов [1, 2] следует, что в сплавах типа Gd_xSi_{1-x} имеет место сложная комбинация эффектов легирования, вызывающих переход металл-диэлектрик в неупорядоченных материалах, с эффектами корреляции спинов в неупорядоченных магнетиках, ответственными за ближний магнитный порядок и переход в фазу спинового стекла. При $T > 50$ K температурная зависимость проводимости $\sigma(T)$ в Gd_xSi_{1-x} такая же, как в его структурном немагнитном аналоге Y_xSi_{1-x}. При $T < 50$ K появляется ОМС, а проводимость спадает с уменьшением температуры значительно быстрее, чем в Y_xSi_{1-x}. В работе [3] в рамках модели перехода Мотта-Андерсона, индуцированного магнитным беспорядком, была предпринята попытка качественного описания такой ситуации, однако полной ясности в понимании свойств реальных материалов данная работа не дала.

В работе [4] было показано, что изменение проводимости с изменением температуры и магнитного поля обусловлено в основном изменением концентрации свободных носителей. При уменьшении температуры ниже некоторого критического значения $T_c \approx 50 - 70$ K наблюдался резкий рост магнитной восприимчивости, сопровождающийся смещением линии спинового резонанса. Исходя из этих результатов, было высказано предположение о существовании в системе объектов нанометровых размеров и о наличии в них ферромагнитного (ФМ) резонанса вследствие магнитного упорядочения при $T < T_c$. В работах [5, 6] было сформулировано принципиальное утверждение, что структурный и магнитный беспорядок в сплавах типа Gd_xSi_{1-x} является более сложным, чем традиционно считалось ранее. Именно, наряду с обычными "микроскопическими" (на масштабе нескольких межатомных расстояний) флуктуациями состава имеют место "наноскопические" (на масштабе десяти и более межатомных расстояний) флуктуации состава – нанокластеры (НК) с повышенным содержанием ионов Gd и сильным ФМ ближним порядком. Вокруг этих НК формируются области с повышенной электронной плотностью ("капли"), играющие важную роль в транспортных свойствах системы. Была разработана адекватная теоретическая модель и приведены многочисленные результаты магнитных, транспортных и магнитотранспортных измерений, косвенно подтверждающие гипотезу о формировании ФМ "капель" ниже T_c. Были успешно интерпретированы особенности транспортных и магнитных свойств сплавов Gd_xSi_{1-x}; в частности, гигантское ОМС обусловлено ориентацией магнитных моментов отдельных НК и понижением порога протекания системы во внешнем магнитном поле, а рост магнитной восприимчивости при уменьшении

[1] e-mail: chumakov@imp.kiae.ru

температуры связан с суперпарамагнитным поведением НК.

В настоящей работе получены прямые экспериментальные доказательства возникновения локального ФМ упорядочения в сплавах Gd_xSi_{1-x}. Целью работы является обнаружение НК и определение их магнитного состояния, для чего совместно со стандартными магнитотранспортными измерениями используется "локальный" экспериментальный метод – упругое рассеяние тепловых нейтронов на магнитном моменте Gd.

2. Магнитотранспортные свойства. Магнитотранспортные измерения пленок аморфного Gd_xSi_{1-x} толщиной $\approx$ 1000 Å, приготовленных в лаборатории проф. Ф. Хеллман методом совместного напыления электронным пучком [2], проведены в диапазоне температур 5–300 K в магнитных полях до 40 кГс. Измерялись магнитополевые зависимости поперечного, R_{xx}, и холловского, R_{xy}, магнетосопротивлений в геометрии Ван Дер Пау при различных температурах. Прежде чем переходить к анализу результатов этих измерений, необходимо, однако, сделать одно замечание.

Мы предполагаем, что проводимость в изучаемой системе осуществляется главным образом электронами, движущимися по широким зонам, сформированным $(s{-}p)$ гибридизованными орбиталями Si. Согласно выводам работы [7], Gd входит в матрицу аморфного Si в виде трехвалентного иона и замыкает оборванные связи между двумя соседними ионами Si, отдавая на эти связи электроны своих внешних $(s{-}d)$ оболочек. Вследствие такой специфики химической связи в a-Gd_xSi_{1-x} аномальный вклад в R_{xy}, обусловленный спин-орбитальным взаимодействием зонных $(s{-}p)$ состояний Si с локализованными f-состояниями Gd, является, по-видимому, несущественным. Поэтому ниже мы будем учитывать только нормальную компоненту R_{xy} и считать, что компоненты тензоров (R_{xx}, R_{xy}) связаны с концентрацией свободных носителей (n) и средней величиной индукции магнитного поля внутри областей протекания тока (B_{in}) соотношениями: $1/R_{xx} \propto n$, $R_{\rm Hall} = R_{xy}/B_{in} \propto 1/n$.

Исходя из данного предположения, можно построить зависимость $B_{in} \propto R_{xy}/R_{xx}$ от напряженности внешнего магнитного поля (H) в относительных единицах (см.рис.1). Видно, что зависимость $B_{in}(H)$ носит в целом сильно нелинейный характер, но в области $H > 20$ кГс становится почти линейной и содержит постоянный вклад, который, мы полагаем, обусловлен намагниченностью насыщения образца $M_s^{\rm exp}$. Принимая во внимание насыщение намагниченности в сильных магнитных полях, мы нормировали на единицу наклон зависимости $B_{in}(H)$ $(H > 20$ кГс) и определили таким образом абсолютное значение B_{in}. Используемый метод позволяет оценивать намагниченность материала и представляет собой холловский магнитометр, чувствительный к локальной намагниченности материала в областях протекания тока. Проводя грубую оценку $M_s^{\rm exp}$ из соотношения $B_{in}(H > 20) \simeq H + 4\pi M_s^{\rm exp}$, получим $M_s^{\rm exp} \simeq 2$ кГс. Эта величина, как нетрудно заметить, существенно превышает теоретическую оценку намагниченности насыщения в предположении однородного распределения атомов Gd в объеме образца $M_s^{\rm theor} = N_m \mu_B s g \simeq 450$ Гс, где $N_m = 7 \cdot 10^{21}$ см$^{-3}$ – средняя концентрация Gd, соответствующая составу $Gd_{0.14}Si_{0.86}$, μ_B – магнетон Бора, $s = 7/2$ – спин иона Gd^{3+}, $g = 2$ – фактор спектроскопического расщепления ионов Gd^{3+}. Таким образом, простейшая интерпретация полученных экспериментальных результатов оказывается далеко не очевидной, и необходим более тонкий анализ ситуации.

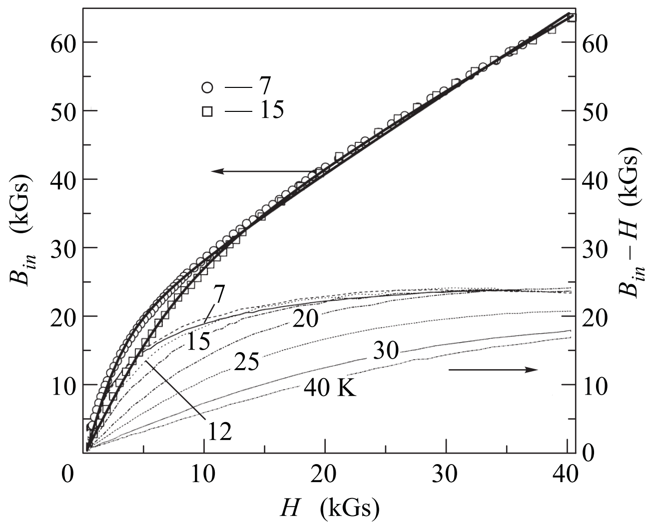

Рис.1. Зависимости локального магнитного поля и намагниченности внутри областей протекания тока от внешнего магнитного поля в образце $Gd_{0.145}Si_{0.855}$ при разных температурах. Линия — подгонка функцией (2)

Принимая во внимание вывод работы [8] о перколяционном характере перехода металл-диэлектрик в Gd_xSi_{1-x}, мы предположили, что в исследуемом материале проводимость осуществляется по сети, образованной НК, внутри которых спины Gd ферромагнитно упорядочены. Среднее магнитное поле для тока, протекающего по НК в образце, имеющем форму тонкой пленки, в случае внешнего магнитного поля H, перпендикулярного плоскости пленки, равно

$$B_{in} = H_{in} + (4\pi - \langle N_c \rangle)M_c = \\ = H - (4\pi - 4\pi/3)f M_c + (4\pi - \langle N_c \rangle)M_c. \quad (1)$$

Здесь введены следующие обозначения: H_{in} – средняя по объему нанокластера напряженность магнитного поля, f – объемная доля НК, $\langle N_c \rangle$ – среднее значение размагничивающего фактора НК, $M_c = M_{cs}\mathcal{L}(K\mu_B sgH_{in}/k_BT)$ – средняя намагниченность НК в направлении поля, $M_{cs} = N_c\mu_B sg$ – намагниченность насыщения НК, K – число ионов Gd в НК, N_c – концентрация ионов Gd в НК, $\mathcal{L}(y) = \coth(y) - 1/y$ – функция Ланжевена, k_B – постоянная Больцмана.

Для не слишком анизотропных по форме и хаотически ориентированных кластеров можно приблизительно положить $\langle N_c \rangle \approx 4\pi/3$, а с учетом малости величины $f \ll 1$ (поскольку $f < x$, измерения проводились на образцах Gd_xSi_{1-x} состава $x = 0.1 \div 0.2$) получим $H_{in} \approx H$. Тогда формула (1) приобретает вид:

$$B_{in} \simeq H + \frac{8\pi\, M_c}{3} \simeq H + \frac{8\pi\, M_{cs}}{3}\mathcal{L}(\frac{K\mu_B sgH}{k_BT}). \quad (2)$$

На рис.1 сплошные линии построены по формуле (2) с оптимально подобранными параметрами M_{cs} и K. Видно, что наблюдаемые в эксперименте зависимости $B_{in}(H)$ довольно хорошо описываются в модели протекания тока по ферромагнитным НК. Для намагниченности насыщения получено значение $M_{cs} \approx 2.8$ кГс, а величина K постепенно растет при понижении температуры и плавно стремится к значению $K \approx 10 \div 15$. Это означает, что локальная концентрация атомов Gd в сети образованной НК, по которой течет ток, приблизительно в 6 раз выше, чем N_m. Учитывая диапазон возможных значений размагничивающего фактора $\langle N_c \rangle = 0 \div 2\pi$, мы оценили максимальную и минимальную величины концентрации атомов Gd в НК на путях протекания $N_{cs} \approx (2 \div 4)\cdot 10^{22}\,\text{см}^{-3}$. Зная среднее количество атомов Gd в кластере $K \approx 10-15$, можно определить его характерный объем: $\approx 300-800\,\text{Å}^3$. Отметим, что намагниченность насыщения имеет примерно одинаковую величину в образцах с существенно отличающимся составом, следовательно, плотность атомов Gd в ФМ НК примерно одинакова. Среднее расстояние между атомами Gd в НК составляет около 3 Å и близко к значению параметра решетки в кристаллах $GdSi_2$. Эти обстоятельства позволяют сделать предположение о химической природе ФМ НК. Возможно, ФМ НК представляют собой включения $GdSi_2$, образующиеся во время синтеза материала.

3. Нейтронная дифракция. Предположения, основанные на данных магнитотранспортных измерений, подтверждаются результатами нейтронно-дифракционного эксперимента, выполненного с целью обнаружения локального ФМ упорядочения. Чтобы получить необходимое для нейтронного эксперимента количество материала, был специально приготовлен образец $Gd_{0.14}Si_{0.86}$ толщиной 1.3 мкм, выращенный на подложке из кристалла NaCl. Образовавшийся после растворения подложки материал исследовался в нейтронных измерениях на высокопоточном нейтронном дифрактометре G6.1, установленном на реакторе ORPHEE (ЛЛБ, Франция). Измерения были проведены с длиной волны падающих нейтронов 4.741 Å (≈ 3.6 мэВ) в диапазоне углов рассеяния $2\theta = 5-140°$ и при температурах $T = 1.7, 4.3, 15, 40, 80$ К. Выбранные углы рассеяния соответствуют переданному нейтроном моменту $q = 0.25-2.5\,\text{Å}^{-1}$, что позволяет определять размеры областей магнитных корреляций в диапазоне 3–30 Å. Данные магнитной дифракции при низкой температуре были получены путем вычитания из соответствующей дифрактограммы данных, полученных при $T = 80$ К, температуре, ниже которой и появляются корреляции между магнитными ионами Gd.

Полученные таким образом результаты для T равных 1.7 и 4.2 К представлены на рис.2. При этих температурах видна модуляция магнитного сигнала в зависимости от волнового вектора. Эта модуляция существенно изменяется при повышении температуры, и при $T = 15$ К магнитное рассеяние не было обнаружено. При $T = 4.2$ К между ионами Gd наблюдаются только ФМ корреляции. Из подгонки функцией $F(q) = A + B\sin(rq)/rq$ (где $r = 2$ Å) удалось оценить длину ФМ корреляций как ≈ 5 Å при расстоянии между ионами Gd ≈ 2 Å. Данные, полученные при самой низкой температуре, $T = 1.7$ К, демонстрируют наличие АФМ корреляций. В то же время наилучшая подгонка получается в предположении о сосуществовании АФМ и ФМ корреляций. Использование функции $F(q) = A + B\,\sin(r_1q)/r_1q + C(1 - \sin(r_2q)/r_2q)$ (где $r_1 = 2$ Å, $r_2 = 5$ Å), позволило оценить длину АФМ корреляций ≈ 15 Å. Этот результат можно интерпретировать как установление АФМ корреляций между ФМ “каплями”. Таким образом, полученные данные дают прямое экспериментальное свидетельство, что “капли” с ближними ФМ корреляциями действительно присутствуют в образце при $T < 15$ К и приводят к увеличению намагниченности.

Значительное уменьшение намагниченности, обнаруженное при наиболее низкой температуре ($T < 2$ К), связано с АФМ корреляциями между ФМ “каплями”. Анализ интенсивности упругого магнит-

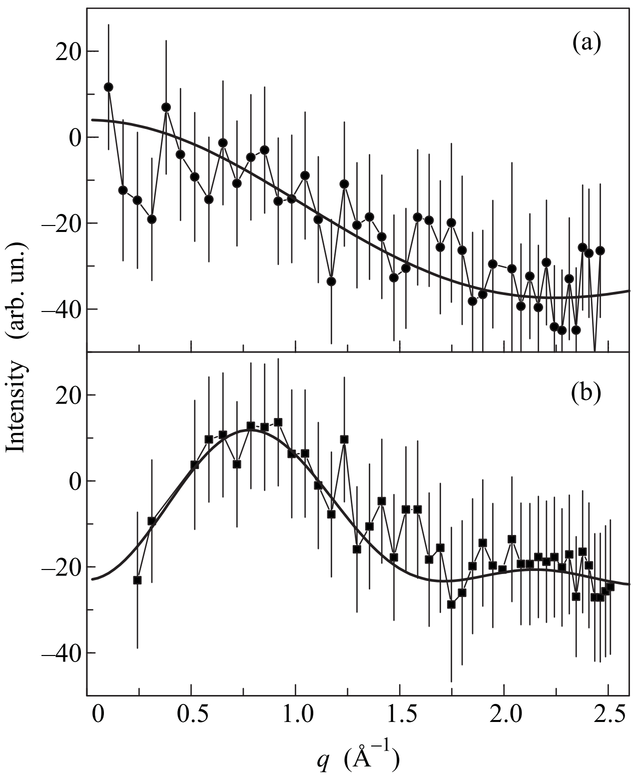

Рис.2. Магнитные нейтронные дифрактограммы образца $Gd_{0.14}Si_{0.86}$ при температурах (a) – $T = 4.2$ K, (b) – $T = 1.7$ K. Линия на (a) – подгонка функцией $F(q) = A + B\sin(rq)/rq$, где $r = 2$ Å. Линия на (b) – подгонка функцией $F(q) = A + B\sin(r_1 q)/r_1 q + C(1 - \sin(r_2 q)/r_2 q)$, где $r_1 = 2$ Å, $r_2 = 5$ Å

ного рассеяния нейтронов позволил сделать заключение, что практически все ионы Gd вовлечены в АФМ корреляции.

4. Заключение. Мы полагаем, что аморфный сплав Gd_xSi_{1-x} представляет собой новый магнитный материал, обладающий уникальными свойствами, характерными как для сильно неоднородных сплавов, так и для нанокомпозитных соединений. Изучаемая система обладает перколяционной проводимостью по сетке нанопроводников, образованных ФМ частицами нанометровых размеров с высокой концентрацией Gd, внедренных в матрицу аморфного кремния с существенно меньшей концентрацией Gd. Наличие областей с высокой концентрацией Gd и локальное ФМ упорядочение в них подтверждаются экспериментами по исследованию дифракции тепловых нейтронов и эффекта Холла, а также самосогласованным численным моделированием [5, 6].

Авторы признательны В.Б. Преображенскому, А.В. Инюшкину, А.Н. Талденкову, В.В. Рылькову и В.И. Ожогину за помощь и плодотворные дискуссии, а также Ф. Хеллман за предоставленные образцы и критические замечания. Работа поддержана грантами CRDF (# RP2-2402-MO-02) и Российского фонда фундаментальных исследований (# 03-02-17467, НШ-# 2037.2003.2).

1. F. Hellman, M. Q. Tran, A. E. Gebala et al., Phys. Rev. Lett. **77**, 4652 (1996).
2. W. Teizer, F. Hellman, and R. C. Dynes, Phys. Rev. Lett. **85**, 848 (2000).
3. S. Kumar and P. Majumdar, Int. J. Mod. Phys. **B15**, 2683 (2001).
4. N. K. Chumakov, S. V. Gudenko, V. V. Tugushev et al., J. Magn. Magn. Mater. **272–276**, 1351 (2004).
5. S. Caprara and V. V. Tugushev, Micro-Electronic Engineering, *to be published* (2005).
6. S. Caprara, V. V. Tugushev, and N. K. Chumakov, в печати, ЖЭТФ (2005).
7. M. Sercheli, C. Rettori, and A. Zanatta, Brazilian Journ. Phys. **32**, 409 (2002).
8. L. Bokacheva, W. Teizer, F. Hellman, and R. C. Dyne, Phys. Rev. **B69**, 235111 (2004).