

# Аномальные магнитные свойства парамагнитной фазы и спиновые поляроны в моносилициде марганца

С.В. Демишев<sup>1,2</sup>, Т.В. Ищенко<sup>1</sup>, А.Н. Самарин<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, ул. Вавилова, 38, г. Москва, 119991, Россия

<sup>2</sup>Московский физико-технический институт (государственный университет),  
Институтский пер., 9, г. Долгопрудный, Московская область, 141700, Россия

E-mail: sasha@lt.gpi.ru

Статья поступила в редакцию 30 марта 2015 г., опубликована онлайн 23 октября 2015 г.

Рассмотрена полевая зависимость намагниченности в парамагнитной фазе моносилицида марганца MnSi, которая характеризуется аномально большой величиной эффективного магнитного момента  $\mu^* = 5,3\mu_B$  и малой величиной намагниченности насыщения  $M_0 = 0,3\mu_B/\text{Mn}$ . Из проведенного анализа следует, что ни теория зонного магнетизма, ни кластерный подход не позволяют объяснить экспериментальные данные, а их адекватное описание возможно в рамках спин-поляронной модели, в которой спиновый полярон представляет собой квазисвязанное состояние зонного электрона и локализованного магнитного момента Mn. Найдено, что учет специфических взаимодействий для простой спиновой конфигурации ферромагнитного типа, характеризующей спиновый полярон, позволяет объяснить экспериментальные данные, причем наблюдаемые значения  $\mu^*$  не связаны с большими локализованными магнитными моментами в объеме образца. Проанализированы возможные способы экспериментальной проверки спин-поляронной модели, в том числе experimentum crucis. Полученные результаты показывают, что парамагнитную фазу MnSi следует рассматривать как фазу, физические свойства которой определяются магнитными неоднородностями на нанометровом пространственном масштабе.

Розглянуто польову залежність намагніченості в парамагнітній фазі моносіліцида марганцю MnSi, яка характеризується аномально великою величиною ефективного магнітного моменту  $\mu^* = 5,3\mu_B$  та малою величиною намагніченості насичення  $M_0 = 0,3\mu_B/\text{Mn}$ . З проведеного аналізу випливає, що ні теорія зонного магнетизму, ні кластерний підхід не дозволяють пояснити експериментальні дані, а їх адекватний опис можливий в рамках спін-поляронної моделі, в якій спиновий полярон являє собою квазіс'язаний стан зонного електрона і локалізованого магнітного моменту Mn. Знайдено, що врахування специфічних взаємодій для простої спінової конфігурації ферімагнітного типу, що характеризує спиновий полярон, дозволяє пояснити експериментальні дані, причому значення  $\mu^*$ , що спостерігаються, не пов'язані з великими локалізованими магнітними моментами в об'ємі зразка. Проаналізовано можливі способи експериментальної перевірки спін-поляронної моделі, в тому числі експерименту crucis. Отримані результати показують, що парамагнітну фазу MnSi потрібно розглядати як фазу, фізичні властивості якої визначаються магнітними неоднорідностями на нанометровому просторовому масштабі.

PACS: 75.25.+z Расположение спинов в магнитоупорядоченных материалах;  
75.30.Cr Моменты насыщения и магнитная восприимчивость;  
75.50.-y Изучение конкретных магнитных материалов.

Ключевые слова: спиновый полярон, моносилицид марганца, парамагнитная фаза, магнитные неоднородности.

## 1. Введение

Силициды переходных металлов с ферромагнитным взаимодействием обладают целым рядом необычных магнитных свойств [1,2]. К наиболее известной аномалии относится существенное расхождение между вели-

чиной эффективного магнитного момента  $\mu_B$ , определенной из константы Кюри в парамагнитной фазе ( $T > T_C$ ), и моментом насыщения в ферромагнитной фазе ( $T < T_C$ ), который оказывается много меньше магнетона Бора в расчете на магнитный ион (здесь  $T_C$  обо-

значает температуру Кюри). Такое расхождение, как правило, интерпретируется в рамках теории зонного магнетизма [3], согласно которой указанное несоответствие — следствие распределенной (а не локализованной на магнитных ионах) спиновой плотности в элементарной ячейке и наличия сильных спиновых флуктуаций. Другая особенность магнитных свойств силицидов заключается в нетривиальной полевой зависимости намагниченности  $M(B, T = \text{const})$  в парамагнитном состоянии. Аппроксимация экспериментальных данных с помощью формулы  $M(B, T) = M_0 \varphi(\mu^* B / k_B \theta(T))$ , в которой  $\theta(T)$  обозначает некоторую эффективную температуру, а функция  $\varphi(x)$  описывает выход полевой зависимости на насыщение и удовлетворяет соотношениям  $\varphi(x \rightarrow 0) = \alpha x$ ,  $\varphi(x \rightarrow \infty) = 1$  и  $d\varphi/dx > 0$ , даст малый магнитный момент насыщения  $M_0$  в расчете на магнитный ион:  $M_0 \ll \mu_B$ . При этом эффективный магнитный момент  $\mu^*$ , определяющий наклон  $\partial M / \partial B$  в слабом магнитном поле, окажется значительно больше магнетона Бора:  $\mu^* \gg \mu_B$ . Например, в случае моносилицида марганца MnSi в парамагнитной фазе величина  $\mu^*$  составляет  $\sim (5-6)\mu_B$ , а момент насыщения оказывается порядка  $M_0 \sim 0,3\mu_B/\text{Mn}$  [4]. В случае твердых растворов замещения  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$  эффективный магнитный момент может достигать величины  $\mu^* \sim 13\mu_B$  [5], в то время как параметр  $M_0$  лежит в пределах  $(0,05 - 0,2)\mu_B/\text{Co}$  [6]. Интересно, что ни  $M_0$ , ни  $\mu^*$  не соответствуют магнитному моменту  $\mu_{\text{eff}}$ , рассчитанному из закона Кюри–Вейсса для молярной восприимчивости  $\chi_{\text{molar}} = C/(T - T_C) = N_A \mu_{\text{eff}}^2 / 3k_B(T - T_C)$ . Экспериментальные данные для константы Кюри  $C$  MnSi дают значение  $\mu_{\text{eff}} = (3k_B C / N_A)^{1/2} \sim 2,2\mu_B$ , которое нельзя сопоставить ни с  $M_0$ , ни с  $\mu^*$ . Таким образом, анализ полевых зависимостей намагниченности тесно связан с интерпретацией закона Кюри–Вейсса при  $T > T_C$ .

Несмотря на то, что проблема аномально больших эффективных магнитных моментов, следующих из полевой зависимости намагниченности, известна свыше тридцати лет, она до сих пор не получила удовлетворительного решения. Иногда аппроксимация данных  $M(B, T)$  с помощью  $\mu^* \gg \mu_B$  трактуется как чисто формальный прием, и в соответствии с теорией зонного магнетизма предполагается, что параметр  $\mu^*$  не имеет непосредственного отношения к величине какого-либо реального магнитного момента в образце [4]. Другое часто встречающееся объяснение заключается в том, что аномальные значения  $\mu^*$  обусловлены образованием в объеме образца магнитных кластеров, составленных из элементарных магнитных диполей  $\sim \mu_B$ , которые связаны сильным ферромагнитным взаимодействием так, что реакция на внешнее магнитное поле кластера как целого описывается параметром  $\mu^* \gg \mu_B$  [5]. В рамках такого подхода считается, что кластеры слабо взаимодействуют между собой, и отношение  $\mu^*/\mu_B$  дает оценку числа магнитных центров в кластере [5]. При

этом подразумевается, что кластер состоит из локализованных магнитных моментов (ЛММ) гейзенберговского типа и, следовательно, данное объяснение противоречит теории зонного магнетизма.

В настоящей работе показано, что ни теория зонного магнетизма, ни различные модификации кластерного подхода не позволяют в полной мере объяснить экспериментальные данные для моносилицида марганца, а возможный выход из положения заключается в использовании спин-поляронной модели, которая была недавно предложена для объяснения магнитных свойств MnSi [4,7]. Изложение материала статьи организовано следующим образом. Вначале проанализирована процедура обработки экспериментальных данных  $M(B, T)$  для MnSi, которая дает аномальные значения параметров  $M_0$  и  $\mu^*$ . Далее рассмотрены различные теоретические подходы и, используя аналог приближения среднего поля, описана модель магнитного кластера — спинового полярона, в которой простая конфигурация магнитных моментов дает как компенсацию суммарного магнитного момента кластера (малая величина  $M_0$ ), так и эффект увеличения эффективного магнитного момента, причем количественные оценки оказываются в хорошем соответствии с экспериментальными результатами. В заключение рассмотрены следствия предложенного подхода, а также возможная интерпретация закона Кюри–Вейсса, которые могут быть проверены экспериментально. Основная задача исследования — рассмотрение аномальных свойств парамагнитной фазы. Хорошо известно, что магнитоупорядоченное состояние MnSi при температурах ниже температуры Кюри  $T_C$  представляет собой спиновую спираль с периодом  $\sim 18$  нм, существенно превышающим размер элементарной ячейки [3]. Спиральное состояние возникает в результате того, что к основному ферромагнитному взаимодействию добавляется сравнительно слабое взаимодействие Дзялошинского–Мории [3]. Поскольку нас интересуют магнитные свойства на пространственной шкале порядка нескольких постоянных решетки, мы пренебрегаем спиральными эффектами и в тех случаях, когда это необходимо, рассматриваем магнитоупорядоченную фазу при  $T < T_C$  как ферромагнитную.

## 2. Анализ полевых зависимостей намагниченности MnSi

Типичные полевые зависимости намагниченности в парамагнитной фазе MnSi показаны на рис. 1. Для анализа экспериментальных данных  $M(B, T = \text{const})$  можно использовать аппроксимацию вида

$$M(B, T) = M_0 \varphi(\mu^* B / k_B \theta(T)) = M_0 \varphi(\mu_B b(T) B / k_B), \quad (1)$$

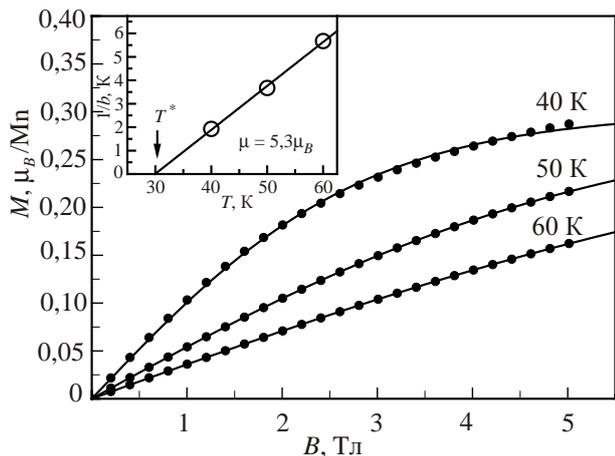


Fig. 1. Полевые зависимости намагниченности MnSi при различных температурах (точки) и модельные аппроксимации для  $\varphi(x) = \text{th } x$  (линии). Экспериментальные данные взяты из работы [2]. Вставка иллюстрирует анализ температурной зависимости  $b(T)$  (см. текст).

которая при каждой фиксированной температуре зависит от двух подгоночных параметров:  $M_0$  и  $b(T) = \mu^*/\mu_B \theta(T)$ . Проблема заключается в том, что формула (1) применяется для описания концентрированной магнитной подсистемы силицидов, а в рамках существующих теоретических моделей соответствующая концентрированному случаю функция  $\varphi(x)$  не только не известна, но и отсутствует подход к ее вычислению. В экспериментальной практике в качестве  $\varphi(x)$  обычно выбирают функцию Бриллюэна  $B_J(x)$ , задавшись («из общих соображений») тем или иным значением квантового числа  $J$ . Таким образом, в описание процесса намагничивания изначально закладывается приближение изолированного магнитного иона, в котором функция  $\theta(T)$  должна совпадать с абсолютной температурой  $\theta(T) = T$ .

Рассмотрим вначале случай  $J = 1/2$ , когда  $\varphi(x) = \text{th } x$ . Данная подстановка в формулу (1) позволяет хорошо описать форму экспериментальных кривых  $M(B, T = \text{const})$  путем двухпараметрической подгонки по методу Левенберга–Маркуардта (сплошные линии на рис. 1). При этом оказывается, что намагниченность насыщения не зависит от температуры и составляет  $M_0 = (0,39 \pm 0,01)\mu_B/\text{Mn}$ , в то время как параметр  $b(T)$  не является постоянным. Как видно на вставке на рис. 1, обратный коэффициент  $1/b(T)$  линейно зависит от температуры  $1/b(T) \sim (T - T^*)$ , т.е. в случае MnSi следует положить  $\theta(T) = T - T^*$ . Интересно, что найденная температура  $T^* \approx 30$  К практически совпадает с температурой Кюри  $T_C$  моносилицида марганца [3,4]. Если по наклону линейной зависимости  $1/b(T) = f(T - T^*)$  рассчитать эффективный магнитный момент, то он составит  $\mu^* = (5,3 \pm 0,2)\mu_B$ , и для аппроксимации экспери-

ментальных данных может быть использовано эмпирическое соотношение

$$M(B, T) = M_0 \text{th} [\mu^* B/k_B(T - T^*)], \quad (2)$$

в котором параметры  $M_0$  и  $\mu^*$  не зависят от температуры. Выражение (1) может рассматриваться как интерполяционная формула, передающая тенденцию к насыщению кривых  $M(B, T)$  в сильном магнитном поле и описывающая в пределе  $B \rightarrow 0$  закон Кюри–Вейсса с постоянной Кюри  $C = M_0 \mu^*/k_B$ .

В предельном случае  $J \rightarrow \infty$  в качестве приближения для  $\varphi(x)$  можно использовать функцию Ланжевена  $L(x)$ . При таком выборе рассчитанные полевые зависимости практически не отличаются от представленных на рис. 1, однако найденные по вышеуказанной схеме параметры составляют  $M_0 = (0,39 \pm 0,02)\mu_B/\text{Mn}$  и  $\mu^* = (11,6 \pm 0,4)\mu_B$ . Из «общих соображений» можно было бы предположить, что расчет с различными функциями  $\varphi(x)$  должен давать одинаковые значения  $M_0$  и, учитывая различие коэффициента  $\alpha$  в асимптотиках  $\varphi(x \rightarrow 0) = \alpha x$ , эффективный магнитный момент в случае  $\varphi(x) = L(x)$  будет в три раза больше, чем в случае  $\varphi(x) = \text{th } x$ . Однако, поскольку аппроксимация проводится в ограниченном диапазоне магнитного поля, где полный выход на насыщение полевой зависимости  $M(B, T = \text{const})$  не достигается, расчет дает значения  $M_0$  и  $\mu^*$ , которые нетривиальным образом зависят от модельного вида функции  $\varphi(x)$ . Отметим, что в идеальном случае различные аппроксимации должны давать совпадающую константу Кюри и, следовательно, произведение  $\alpha M_0 \mu^*$  не должно зависеть от выбора  $\varphi(x)$ . Легко видеть, что в рассматриваемом примере отношение расчетных констант Кюри для  $\varphi(x) = \text{th } x$  и  $\varphi(x) = L(x)$  составляет  $0,93 \pm 0,2$ . Если считать этот результат удовлетворительным, то обе аппроксимации,  $\varphi(x) = \text{th } x$  и  $\varphi(x) = L(x)$ , одинаково хорошо описывают экспериментальные данные. Таким образом, в зависимости от произвольно выбранного алгоритма обработки, для теоретической интерпретации могут быть «предложены» эффективные магнитные моменты, лежащие в интервале  $(5-12)\mu_B$ . При этом основная аномалия  $M_0 \ll \mu_B/\text{Mn}$  и  $\mu^* \gg \mu_B$  на качественном уровне сохраняется.

Выполненный анализ схемы обработки экспериментальных данных показывает, что, помимо очевидной задачи объяснения малых значений  $M_0$  и большой величины  $\mu^*$ , адекватная теоретическая модель должна отвечать на вопрос о том, могут ли полученные из эксперимента значения  $\mu^*$  соответствовать каким-либо реальным магнитным моментам в образце. Учитывая неопределенность в нахождении эффективного магнитного момента, нельзя заранее исключить ситуацию, когда этот параметр имеет иную природу и представляет собой лишь некоторую характеристику зави-

симости  $M(B, T = \text{const})$ . Кроме того, едва ли возможно получить точное выражение для  $\phi(x)$  из первых принципов. Поэтому представляет интерес сформулировать возможные ограничения на выбор модельной аппроксимации, используемой для обработки экспериментальных данных.

### 3. Качественное обсуждение теоретических моделей

#### 3.1. Теория зонного магнетизма

В теории зонного магнетизма предполагается, что спиновая плотность распределена по элементарной ячейке кристалла и локализованный магнитный момент отсутствует [3]. Для описания магнитных свойств зонного магнетика основной характеристикой является средний квадрат амплитуды спиновых флуктуаций  $S_L^2(T)$ . В рамках этого подхода дается специфическая интерпретация закона Кюри–Вейсса, согласно которой магнитная восприимчивость  $\chi(T)$  определяется температурной зависимостью вида  $S_L^2(T) \sim T$ , причем в парамагнитной фазе  $1/\chi(T) \sim S_L^2(T) - S_L^2(T_C)$  [3]. Однако сама константа Кюри не дает информации об амплитуде магнитного момента или об усредненной плотности спинов и в этом смысле не является параметром, допускающим часто используемую в литературе элементарную интерпретацию. В то же время средний квадрат амплитуды спиновых флуктуаций отличается от квадрата намагниченности насыщения на численный коэффициент,  $S_L^2(T_C) = (3/5)M_0^2$  [3], и, следовательно, именно параметр  $M_0$  имеет прямой физический смысл. Интересно, что вычисления методом DFT для зонной модели дают для парамагнитной фазы MnSi момент насыщения  $0,25\mu_B/\text{Mn}$  [8], разумно согласующийся с экспериментальными данными. Таким образом, с точки зрения теории зонного магнетизма, эмпирическая аппроксимация  $M(B, T) = M_0\phi(\mu^*B/k_B(T - T^*))$  означает, что для константы Кюри используется выражение вида  $C \sim M_0\mu^*/k_B$  и магнитный момент  $\mu^*$  представляет собой эффективный параметр, который задает наклон кривой  $\partial M/\partial B$  при  $B \rightarrow 0$ . Поэтому найденные большие значения  $\mu^*$  не связаны с какими-либо реальными магнитными моментами в образце или с величиной спиновой плотности, и наблюдение одновременно малых  $M_0$  и больших  $\mu^*$  может быть качественно согласовано с теоретическими представлениями. Тем не менее в рамках рассматриваемого подхода невозможно ответить, почему  $\mu^*$  появляется именно в аргументе функции  $\phi(x)$  и почему этот параметр определяет форму всей кривой намагниченности, а не только область слабого магнитного поля.

Зонное описание зависимости  $M(B)$  при конечных температурах является сложной задачей, требующей корректного учета как температурной и полевой зависимостей функции  $S_L^2$ , так и воздействия температуры на электронный спектр. Отметим, что как в стандарт-

ной теории зонного магнетизма Мори [3], так и в ее модификации, предложенной позднее Каулем [9,10], отсутствует расчет полевой зависимости намагниченности и существующие теоретические результаты ограничены пределом  $B \rightarrow 0$  и вычислением восприимчивости. По-видимому, это является следствием концептуальной проблемы, присущей моделям, основанным на доминирующей роли спиновых флуктуаций. Характерная особенность таких теорий — эффект подавления спиновых флуктуаций магнитным полем [3,9,10], и, поскольку  $S_L^2 \sim M_0^2$ , параметр  $M_0$  должен уменьшаться при увеличении магнитного поля, что противоречит экспериментальным данным, в том числе полученным в области полей  $B \sim 30$  Тл [11]. Таким образом, зонная теория магнетизма, которая успешно объясняет первую из аномалий (расхождение между величиной магнитного момента, определенной из константы Кюри в парамагнитной фазе, и моментом насыщения в ферромагнитной фазе), встречается с существенными трудностями при попытке дать последовательное и непротиворечивое объяснение особенностей полевой зависимости намагниченности.

#### 3.2. Модель спиновых кластеров

Кластерный подход к интерпретации аномальной величины  $\mu^*$  в силицидах был, по-видимому, первым и основывался на анализе экспериментальных данных, аналогичном рассмотренному выше в разд. 2. В этой модели предполагается, что магнитная подсистема разбивается на магнитные кластеры, состоящие из  $N_s$  магнитных диполей, сильно связанных между собой таким образом, что при всех значениях магнитного поля сохраняется их параллельная ориентация внутри кластера. Взаимодействие между отдельными кластерами считается слабым, так что процесс намагничивания образца рассматривается как стандартная поляризация магнитным полем газа диполей с перенормированной величиной  $\mu^*$  и концентрацией  $n^*$ . Дальнейший анализ зависит от выбора той или иной модели магнетизма MnSi. В модели локализованных магнитных моментов кластер образуется из ЛММ марганца, которые, согласно LDA расчетам, равны  $\mu_{\text{Mn}} = 1,2\mu_B$  [12]. Можно показать [4], что в рамках данного подхода магнитный вклад ЛММ MnSi значительно (на два-три порядка) превышает паулиевский вклад зонных электронов. В такой ситуации  $N_s \sim \mu^*/\mu_{\text{Mn}} \sim 4-10$  и, учитывая, что элементарная ячейка MnSi содержит 4 иона марганца, размер кластера должен составлять 0,5–1 нм. Однако в рамках такого подхода остается неясной причина разбиения ЛММ марганца на отдельные кластеры, которое должно происходить даже в совершенном монокристалле. Кроме того, в рассматриваемой модели концентрация перенормированных магнитных диполей  $n^*$  будет порядка  $n^* \sim n_{\text{Mn}}/N_s$  и, следовательно, момент насыщения в

расчете на ион Mn равен  $M_0 = n^* \mu^* / n_{\text{Mn}} \sim (n_{\text{Mn}} / N_s) (N_s \mu_{\text{Mn}}) / n_{\text{Mn}} \equiv \mu_{\text{Mn}} \sim 1, 2 \mu_B$ . Этот результат, очевидно, не соответствует экспериментальным значениям  $M_0 = (0, 3 - 0, 4) \mu_B / \text{Mn}$ .

Следует отметить еще одну принципиальную трудность кластерного подхода. Чтобы получить высокие величины  $\mu^*$ , необходимо выстроить элементарные магнитные диполи внутри кластера в одном и том же направлении и найти тип магнитного взаимодействия, заставляющий спины «склеиваться» вместе. Такая ситуация вряд ли возможна для спиновых кластеров, состоящих из ЛММ марганца, но вполне осуществима для электронных ферромагнитных капель — ферронов, поскольку феррон представляет собой особое квантово-механическое состояние, отвечающее параллельной ориентации спинов образующих его электронов [13]. Интересно, что в недавней публикации [14] результаты  $\mu\text{SR}$ -спектроскопии для MnSi объяснялись присутствием в парамагнитной фазе ферронных состояний с эффективным магнитным моментом  $\mu^* \sim 24 \mu_B$ . Такой подход возвращает нас к парадигме зонного магнетизма, в которой локализованный магнитный момент на марганце отсутствует, а зонные электроны образуют ферроны. Однако если предположить, что все электроны проводимости участвуют в образовании ферронов, а парамагнитная фаза представляет собой газ перенормированных магнитных диполей (ферронов) с магнитным моментом  $\mu^*$ , то для намагниченности насыщения аналогичные рассуждения дают оценку  $M_0 \sim (n_e / n_{\text{Mn}}) \mu_e / \text{Mn}$  (где  $n_e$  и  $\mu_e$  — концентрация и магнитный момент зонных электронов соответственно). Для MnSi, по литературным данным, отношение  $n_e / n_{\text{Mn}}$  составляет 0.9–2 [15, 16] и, так как  $\mu_e \sim \mu_B$ , объяснение экспериментальных значений  $M_0$ , которые оказываются меньше магнетона Бора в расчете на ион марганца, должно быть нетривиальным.

Для интерпретации наблюдаемых значений  $M_0$  в ферронной версии кластерной модели можно постулировать, что не все зонные электроны участвуют в образовании ферронов, вклад которых в полную намагниченность образца и в данном случае должен быть много больше паулиевского вклада оставшихся носителей заряда. Данное объяснение фактически сводится к утверждению, что в парамагнитной фазе MnSi имеет место магнитная неоднородность (магнитное фазовое расслоение) на масштабах, превышающих размер спинового кластера. При этом в намагниченности системы, состоящей из ферронов и зонных электронов, будет доминировать магнитный вклад ЛММ ферронов в силу малости паулиевского вклада [4].

Несмотря на то, что ферронная модель на качественном уровне может объяснить экспериментальные данные, она имеет два существенных недостатка. Во-первых, ферронное состояние подавляется магнитным полем [13] и, следовательно, возникает та же проблема

немонотонной зависимости  $M(B, T = \text{const})$ , что и в теории зонного магнетизма. Во-вторых, в рамках ферронной модели невозможно объяснить недавно открытую ферримагнитную аналогию, которая будет рассмотрена в следующем пункте.

### 3.3. Спин-поляронная модель

Исходно спин-поляронная модель была предложена для объяснения экспериментальных данных по магнитному резонансу в MnSi [7]. Исследование динамических магнитных свойств однозначно показывает, что магнитная подсистема моносилицида марганца состоит из локализованных магнитных моментов [4, 7]. Этот результат согласуется с результатами LDA расчетов, согласно которым спиновая плотность MnSi локализована на ионах марганца и величина таких ЛММ составляет  $\mu_{\text{Mn}} \approx 1, 2 \mu_B$  [12]. Таким образом, для объяснения малой величины магнитного момента насыщения необходимо ввести некоторый механизм экранирования ЛММ марганца. Согласно работам [4, 7], такая экранировка обусловлена формированием в окрестности ионов Mn спиновых поляронов, представляющие собой квазисвязанные состояния зонных электронов в окрестности иона Mn, в которых спины марганца и спины электронов ориентированы антипараллельно. Такая конструкция может рассматриваться как ферримагнетик наноразмера, причем можно показать, что ожидаемые в данной модели динамические магнитные свойства хорошо согласуются с экспериментом [7]. В рамках спин-поляронного подхода спиновые флуктуации (определяющие, в частности, ширину линии магнитного резонанса [4, 7]) обусловлены переходами электронов между зонными и квазисвязанными состояниями.

Так как магнитный момент MnSi оказывается локализованным, константа Кюри  $C$  перестает быть фиктивным параметром и ее величина позволяет оценить значение ЛММ марганца в парамагнитной фазе. Анализ температурной зависимости магнитной восприимчивости, выполненный в [4], дает для экспериментального значения  $C$  величину  $\mu_{\text{Mn}} = 1, 29 \alpha^{1/2} \mu_B$ , которая может быть согласована с расчетным значением  $\mu_{\text{Mn}} \sim 1, 2 \mu_B$  в случае  $\alpha = 1$ , т.е. для  $\varphi(x) = \text{th } x$ . В работах [4, 7] предполагается, что спиновые поляроны образуются при температуре перехода в ферромагнитное состояние и существуют в области  $T < T_C$ , следствием чего являются редуцированные значения  $M_0 \ll \mu_B / \text{Mn}$  и первая аномалия магнитных свойств силицидов получает естественное объяснение без привлечения представлений зонной теории магнетизма.

Тем не менее развитый в [4, 7] спин-поляронный подход не является вполне последовательным. Прежде всего отметим, что из данных по магнитному резонансу вытекает, что спиновые флуктуации MnSi как при  $T < T_C$ , так и при  $T > T_C$  имеют общую природу [7],

что указывает на наличие спиновых поляронов не только в ферромагнитной, но и в парамагнитной фазе. К аналогичному требованию приводят и результаты исследования магнитосопротивления, свидетельствующие о том, что для  $MnSi$  в парамагнитной фазе доминирующим механизмом рассеяния является рассеяние на локализованных магнитных моментах, которое может быть количественно описано в рамках классической модели Иосиды [4,17]. Чтобы объяснить возникновение иосидовского механизма магнитного рассеяния [17] и наблюдаемую величину магнитосопротивления в концентрированном случае, оказывается необходимым рассматривать квазисвязанные состояния электронов в окрестности ЛММ марганца, а также учесть сильные спиновые флуктуации, которые будут разрушать когерентность магнитного рассеяния на соседних магнитных центрах [4].

Гипотеза о существовании спиновых поляронов как в ферромагнитной, так и в парамагнитной фазе, очевидно, требует нового объяснения природы перехода в ферромагнитное состояние. С этой целью можно обратиться к экспериментальным и теоретическим результатам, полученным при исследовании гексаборида европия  $EuB_6$ , в котором существование спиновых поляронов считается надежно установленным [18–21]. В этом материале концентрация носителей заряда в расчете на ион европия составляет  $\sim 10^{-2}$ , поэтому магнитная подсистема ведет себя как совокупность ЛММ  $Eu$ , взаимодействующих с помощью РККИ обмена, а спин-поляронные эффекты наиболее ярко проявляются в транспортных свойствах [22]. При этом оказывается, что температурная зависимость электропроводности  $MnSi$  в окрестности ферромагнитного перехода (включая «тонкую структуру» производной удельного сопротивления по температуре и ее эволюцию в условиях высокого давления [4,23]) оказывается аналогичной экспериментальным данным для  $EuB_6$  [18,19]. Интересно, что пример гексаборида европия стимулировал появление теоретической модели, в которой различные магнитные фазы образуются из спиновых поляронов [21]. Согласно расчетам Ю и Мина [21], образование спиновых поляронов происходит при температуре  $T_0 \gg T_C$  в парамагнитной фазе, а переход в магнитоупорядоченную ферромагнитную фазу соответствует порогу протекания в системе спиновых поляронов [21]. Таким образом, согласно существующим теоретическим представлениям, спиновые поляроны могут существовать в широком диапазоне температур  $T > T_C$ , а переход в ферромагнитное состояние может трактоваться как перколяционный переход в спин-поляронной системе.

Продолжая рассмотрение аналогий, необходимо специально выделить результаты работы [24], в которой было установлено поразительное сходство между  $MnSi$  и ферримагнетиком  $Cu_2OSeO_3$ . Оба материала

демонстрируют идентичные температурные зависимости магнитной восприимчивости и теплоемкости в окрестности температуры Кюри, хотя  $Cu_2OSeO_3$  является диэлектриком с ЛММ гейзенберговского типа, в котором свободные электроны полностью отсутствуют. Такое совпадение нельзя объяснить в рамках любой модели зонного магнетизма, в том числе в ферронной версии кластерной модели. Очевидно, что только спин-поляронная модель магнитных свойств  $MnSi$ , в которой спиновый полярон может рассматриваться в качестве элементарного ферримагнетика, позволяет интерпретировать данную ферримагнитную аналогию.

Проведенный анализ показывает, что для модели, в которой спиновые поляроны существуют как в парамагнитной, так и в магнитоупорядоченных фазах  $MnSi$ , ключевой проблемой оказывается описание магнитных свойств парамагнитной фазы. Необходимо предложить не только интерпретацию константы Кюри, но и выяснить вопрос о том, может ли спин-поляронный подход объяснить одновременно малые  $M_0$  и большие  $\mu^*$ . Так как при этом отсутствуют априорные ограничения на размер спинового полярона, модель должна включать случай, когда квазисвязанное состояние электрона возникает в окрестности одного иона марганца и спиновая конфигурация не является слишком сложной. Далее мы покажем, что указанными аномальными магнитными свойствами обладает довольно простая конфигурация спинов, соответствующая спин-поляронному состоянию  $MnSi$ .

#### 4. Модель спинового полярона и описание намагничивания в парамагнитной фазе $MnSi$

Рассмотрим спиновый кластер, который может быть описан двумя векторами намагниченности  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$ , образующими углы  $\theta_1$  и  $\theta_2$  с внешним магнитным полем  $\mathbf{V}$ . Предполагается, что все три вектора лежат в одной плоскости  $xu$  и вектор  $\mathbf{V}$  параллелен оси  $y$  (см. вставку на рис. 2). Относительно магнитных взаимодействий внутри кластера, определяющих ориентацию  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$ , сделаны следующие предположения. 1. Для любого внешнего магнитного поля векторы  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$  параллельны соответствующим локальным полям  $\mathbf{V}_1$  и  $\mathbf{V}_2$ . 2. Локальные поля  $\mathbf{V}_1$  и  $\mathbf{V}_2$  линейно зависят от  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$ . 3. Суммарный вектор  $\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2$  ориентирован вдоль внешнего магнитного поля  $\mathbf{V}$  и, следовательно, проекции удовлетворяют условиям  $M_{1x} + M_{2x} = 0$  и  $M_{1y} + M_{2y} \neq 0$ . 4. Ориентация векторов  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$  соответствует случаю ферримагнетика и полный магнитный момент кластера оказывается редуцированным (вставка на рис. 2). Как и в стандартной квазиклассической теории ферримагнетизма [25], примем, что для абсолютных величин намагниченности справедливо соотношение  $M_{1,2} = M_{10,20} \Phi(\mu_{1,2} B_{1,2} / k_B T)$ , где  $\Phi(x)$  — некоторая общая для двух векторов намагниченности функция, описы-

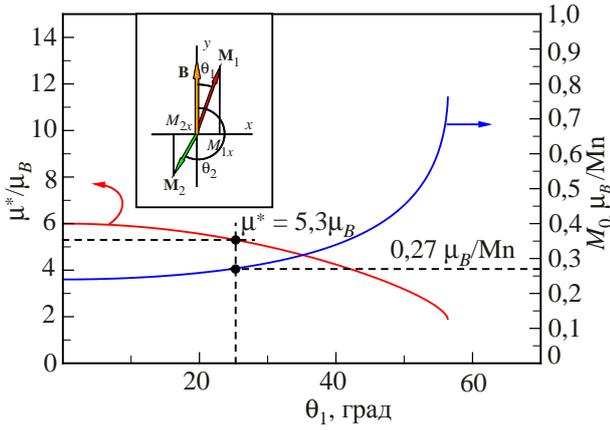


Fig. 2. (Онлайн в цвете) Спиновая конфигурация (вставка) и расчет эффективного магнитного момента и намагниченности насыщения в модели спинового полярона для случая MnSi.

вающая среднюю спиновую поляризацию,  $B_{1,2}$  — амплитуды локальных полей, действующих на  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$ . Как и раньше, функция  $\varphi(x)$  удовлетворяет соотношениям  $\varphi(x \rightarrow 0) = \alpha x$ ,  $\varphi(x \rightarrow \infty) = 1$  и  $d\varphi/dx > 0$ . Намагниченности  $M_1$  и  $M_2$  представляют собой магнитные вклады элементарных магнитных диполей  $\mu_1$  и  $\mu_2$ , полное число которых в спиновом кластере составляет  $n_1$  и  $n_2$  соответственно, таким образом, намагниченности насыщения равны  $M_{10} = \mu_1 n_1$  и  $M_{20} = \mu_2 n_2$ . В рамках сделанных предположений локальные поля записываются в виде

$$\mathbf{B}_1 = \mathbf{B} + w_{11}\mathbf{M}_1 + w_{12}\mathbf{M}_2, \quad \mathbf{B}_2 = \mathbf{B} + w_{21}\mathbf{M}_1 + w_{22}\mathbf{M}_2. \quad (3)$$

Формулы (3) аналогичны стандартным выражениям в теории среднего поля [25], однако в нашем случае  $w_{ij}$  представляют собой параметры, описывающие магнитные взаимодействия внутри кластера, которые обеспечивают заданную спиновую конфигурацию. Действительно, принимая во внимание, что  $M_{1x} + M_{2x} = 0$ , можно записать условия параллельности векторов намагниченности локальным полям

$$w_{12}(M_{1y} + M_{2y}) + B = 0, \quad w_{12} = w_{21}, \quad (4)$$

которые, согласно сделанным предположениям, должны выполняться при любых значениях внешнего магнитного поля  $\mathbf{B}$ . В слабом магнитном поле полная намагниченность спинового кластера  $M = M_{1y} + M_{2y} = \chi B$ , следовательно, параметры  $w_{12}$  и  $w_{21}$  оказываются функциями температуры  $w_{12} = w_{21} = -1/\chi(T)$ . Однако, если намагниченность близка к насыщению, уравнение (4) дает полевую зависимость параметров  $w_{12} = w_{21} = -B/M_0$ , где  $M_0$  — полный магнитный момент насыщения спинового кластера. Таким образом, требования параллельности  $\mathbf{M}_1 \parallel \mathbf{B}_1$  и  $\mathbf{M}_2 \parallel \mathbf{B}_2$  для произвольного  $\mathbf{B}$  в рассматриваемом приближении эквивалентны условию  $w_{12} = w_{21} = -B/M(B, T)$ , и параметры модели

$w_{12}$  и  $w_{21}$  зависят от температуры и магнитного поля. При этом в стандартной теории среднего поля параметры  $w_{ij}$  сводятся к численным коэффициентам в формулах типа (3) [25]. С помощью (5) несложно получить выражения для амплитуд локальных полей:

$$B_1 = M_1 \left( w_{11} + \frac{B}{M} \right), \quad B_2 = M_2 \left( w_{22} + \frac{B}{M} \right). \quad (5)$$

Тогда намагниченности  $M_1$  и  $M_2$  приобретают вид

$$M_1 = M_{10} \varphi(\mu_1 M_1 [w_{11} + B/M] / k_B T),$$

$$M_2 = M_{20} \varphi(\mu_2 M_2 [w_{22} + B/M] / k_B T), \quad (6)$$

и полная намагниченность спинового кластера описывается формулой

$$M = M_1 \cos \theta_1 - \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta_1}, \quad (7)$$

где угол  $\theta_1$  лежит в пределах  $0 \leq \theta_1 \leq \arcsin(M_2/M_1)$ . Следующий шаг заключается в учете экспериментального факта, что намагниченность MnSi монотонно растет с магнитным полем и  $\partial M / \partial B > 0$  (рис. 1). Это требование удовлетворяется в том случае, когда аргументы функции  $\varphi$  в выражениях (6) совпадают. Равенство аргументов возможно при выполнении условий согласования  $w_{11} = w_{22}$  и  $\mu_1 M_1 = \mu_2 M_2$ . Далее обозначим кластеры, для которых выполняются условия согласования, как «специальные кластеры». Легко видеть, что для специальных кластеров отношение  $M_1/M_2$  для любой температуры и магнитного поля будет оставаться постоянным:  $M_1/M_2 = M_{10}/M_{20}$ . Тогда из формул (6) и (7) может быть найдена полная намагниченность

$$M(B, T) = M_{10} f(M_{20}, M_{10}, \theta_1) \times \varphi \left( \frac{\mu_1}{k_B T} \left[ M_1 w_{11} + \frac{B}{f(M_{20}, M_{10}, \theta_1)} \right] \right), \quad (8)$$

$$f(M_{20}, M_{10}, \theta_1) = \cos \theta_1 - \sqrt{(M_{20}/M_{10})^2 - \sin^2 \theta_1}. \quad (9)$$

Функция  $f(M_{20}, M_{10}, \theta_1)$  зависит только от отношения намагниченностей насыщения и угла между вектором  $\mathbf{M}_1$  и внешним магнитным полем и, при соответствующем выборе параметров, значение  $f$  может быть сколь угодно малым. Если параметр  $w_{11}$  не слишком велик и в аргументе функции  $\varphi$  в формуле (8) доминирует второй член, то будет выполняться приближенное соотношение  $M(B, T) \approx M_0 \varphi(\mu^* B / k_B T)$  с увеличенным эффективным магнитным моментом  $\mu^*$  и редуцированной величиной намагниченности насыщения  $M_0$ , которые определяются одним и тем же множителем:

$$\mu^* = \mu_1 / f(\mu_1, \mu_2, \theta_1), \quad M_0 = n_1 \mu_1 f(\mu_1, \mu_2, \theta_1). \quad (10)$$

При записи (10) учли условие согласования в виде  $\mu_1 M_{10} = \mu_2 M_{20}$  ( $M_{20}/M_{10} = \mu_1/\mu_2$ ). Для специальных кластеров в слабых магнитных полях формулы (6)–(8) при постоянном значении параметра  $w_{11}$  приводят для магнитной восприимчивости  $\chi = M/B$  к закону Кюри–Вейсса:

$$\chi = \frac{C}{T - T^*}, \quad (11)$$

в котором константа Кюри  $C$  и аналог температуры Кюри  $T^*$  определяются выражениями

$$C = \alpha M_{10} \mu_1 / k_B = \alpha M_{20} \mu_2 / k_B, \quad T^* = C w_{11} = C w_{22} \quad (12)$$

и не зависят от функции  $f(M_{20}, M_{10}, \theta_1)$ . Отметим, что учет взаимодействия между специальными кластерами в приближении среднего поля сводится к перенормировке параметра  $w_{11}$  и не меняет аналитических выражений для  $M(B, T)$  и  $T^*$ . Несложно показать, что в случае  $w_{11} = \text{const}$  формулу (8) нельзя привести к виду (2) и, следовательно, эмпирическое выражение для намагниченности может рассматриваться лишь в качестве интерполяционного. Однако если допустить, что параметры модели  $w_{11}$  и  $w_{12}$  связаны между собой так, что  $w_{11} = -w_{12} T^* / (T - T^*)$  и  $w_{12} = -B/M(B, T)$ , то намагниченность специального кластера примет вид  $M = M_0 \phi(\mu^* B / k_B (T - T^*))$  и формула типа (2) окажется точной, причем для  $M_0$  и  $\mu^*$  будут справедливы выражения (10).

Прежде чем обсуждать физический смысл введения специальных кластеров, проанализируем вопрос о том, могут ли они быть использованы для объяснения экспериментальных данных в моносилциде марганца. Если отождествить специальный кластер с рассмотренным ранее спиновым поляроном, то один из векторов  $\mathbf{M}_{1,2}$  должен соответствовать ЛММ марганца, а другой должен описывать вклад квазисвязанных электронов. Для оценки примем, что элементарные магнитные моменты для ЛММ марганца и квазисвязанных электронов равны  $\mu_{\text{Mn}} \sim 1,2 \mu_B$  и  $\mu_e \sim \mu_B$  [4,12], а соответствующие намагниченности насыщения  $M_{0,\text{Mn}}$  и  $M_{0,e}$  подчиняются условию согласования  $\mu_{\text{Mn}} M_{0,\text{Mn}} = \mu_e M_{0,e}$ . В рассматриваемой модели предполагается, что магнитный отклик спинового кластера парамагнитен и, следовательно,  $f > 0$ . В случае MnSi положительной величине  $f$  будет соответствовать конфигурация спинов в специальном кластере, для которой вектор  $\mathbf{M}_1$  описывает квазилокализованные электроны, а вектор  $\mathbf{M}_2$  — ЛММ марганца. Это означает, что магнитный вклад электронной компоненты направлен вдоль магнитного поля, а магнитный момент Mn — в противоположном направлении.

После идентификации магнитных вкладов можно использовать формулы (10) для вычисления  $\mu^*$  и  $M_0$ . Следует отметить, что уравнения (10) не зависят от точного вида функции  $\phi$  и, следовательно, можно исполь-

зовать соответствующие оценки  $\mu^*$  и  $M_0$  в качестве дополнительного критерия правильности выбора аналитического представления намагниченности для обработки эксперимента. На рис. 2 видно, что для эффективного магнитного момента  $\mu^* = 5,3 \mu_B$  ( $\phi(x) = \text{th } x$ ) модель предсказывает значение  $M_0 = 0,27 \mu_B / \text{Mn}$  в разумном согласии с экспериментом, где  $M_0 \approx 0,3 \mu_B / \text{Mn}$ . При этом модельная конфигурация спинов соответствует углу  $\theta_1 \approx 25^\circ$  (рис. 2). В то же время эффективный магнитный момент для функции Ланжевена  $\phi(x) = L(x)$  равен  $\mu^* \sim 11,6 \mu_B$  (см. разд. 1) и это значение несовместимо с модельным расчетом, согласно которому при  $\mu_{\text{Mn}} \sim 1,2 \mu_B$  и  $\mu_e \sim \mu_B$  в MnSi  $\mu^* < 6 \mu_B$  (рис. 2). Таким образом, в модели спинового полярона возникают некоторые дополнительные ограничения на вид функции  $\phi(x)$ .

Отметим, что в рамках предложенного подхода постоянство параметров  $\mu^*$  и  $M_0$  означает постоянство углов между векторами  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$  и внешним магнитным полем. Иными словами, предполагается, что магнитные взаимодействия фиксируют ориентацию спинов внутри кластера. Данная особенность модели исключает из рассмотрения магнитные переходы с переворотом спина, которые естественным образом возникают при квазиклассическом описании антиферромагнетиков и ферромагнетиков [25], и, очевидно, обусловлена тем, что формулы (3) используются для описания магнитных взаимодействий на нанометровой шкале и лишь формально напоминают стандартное приближение среднего поля.

Из предыдущего рассмотрения следует, что если для спинового кластера нарушается условие согласования, то его полевая зависимость намагниченности будет немонотонной функцией магнитного поля. Поскольку в эксперименте немонотонные зависимости  $M(B)$  не наблюдаются, должен существовать некоторый физический механизм, препятствующий образованию кластеров такого рода. По нашему мнению, требование  $\partial M / \partial B > 0$  и вытекающие из него условия согласования можно связать с условиями термодинамической стабильности кластера. Согласно [26], помимо очевидного условия на изотермическую восприимчивость  $\partial M / \partial B > -1/4\pi$ , необходимо учитывать условие на калорическое уравнение состояния. Если использовать выражение для намагниченности вида  $M \approx M_0 \phi(\mu^* B / k_B \theta(T))$ , в котором  $\partial \theta / \partial T = 1$ , то  $\partial M / \partial T \approx (-B / \theta(T)) \partial M / \partial B$ , и условие на калорическое уравнение состояния [26] принимает вид

$$C_M + \frac{TB^2}{\theta(T)^2 (1 + 4\pi \partial M / \partial B)} \frac{\partial M}{\partial B} > 0, \quad (13)$$

где  $C_M$  обозначает теплоемкость при постоянной намагниченности. Из неравенства (13) следует, что в пределе  $B \rightarrow 0$  рассматриваемый парамагнетик стаби-

лен, если  $C_M > 0$ . Однако если актуальные температуры не слишком низкие, а магнитные поля не малы, то должно также выполняться и ограничение на знак производной:  $\partial M / \partial B > 0$ . Таким образом, наша гипотеза заключается в том, что специальные кластеры термодинамически стабильны, а кластеры, в которых нарушается условие согласования, не стабильны и, следовательно, не образуются. Строгое доказательство этой гипотезы требует проведения микроскопического расчета энергетических уровней спинового кластера, что представляет собой отдельную задачу, которая выходит за рамки настоящей работы.

Если величина элементарных магнитных диполей, образующих специальный кластер (спиновый полярон), фиксирована, то условия согласования требуют строго определенного числа электронов  $N_e$  в расчете на ион марганца:  $N_e = (\mu_{Mn} / \mu_e)^2 \sim 1,44$ . Для интерпретации дробной величины  $N_e$  можно предложить два подхода. Во-первых, можно считать, что отношение  $\mu_{Mn} / \mu_e$  известно с некоторой погрешностью и, на самом деле, значение  $N_e$  должно даваться некоторой рациональной дробью, представляющей собой отношение числа электронов к числу ионов Mn в кластере. Например, исходя из вышеприведенной оценки  $N_e$ , естественно ожидать, что спиновый полярон минимального размера порядка постоянной ячейки MnSi соответствует случаю, когда на два иона марганца приходится три электрона. Однако, по-видимому, более вероятной является ситуация, когда дробное значение  $N_e$  отражает среднее число электронов в кластере, зависящее от вероятности переходов между квазисвязанными и зонными состояниями. Поэтому при анализе стабильности кластеров необходимо дополнительно учитывать спиновые флуктуации, что еще более усложняет проверку предложенной интерпретации условий согласования.

Отметим, что величина  $N_e \sim 1,44$  попадает в диапазон неопределенности отношения  $n_e / n_{Mn}$  в MnSi (разд. 3.1), поэтому нельзя ответить на вопрос о том, какая часть ионов марганца участвует в образовании спиновых поляронов. При этом в зависимости от соотношения между  $N_e$  и  $n_e / n_{Mn}$  возможны принципиально различные ситуации. Если  $n_e / n_{Mn} > N_e$ , то все ионы марганца участвуют в образовании спиновых поляронов и полная намагниченность образца представляет собой сумму насыщающегося по магнитному полю основного спин-поляронного вклада и паулиевского вклада избыточных зонных электронов, величина которого будет много меньше спин-поляронного. При выполнении условия  $n_e / n_{Mn} < N_e$  число возможных спиновых поляронов будет меньше числа ионов марганца, в результате чего возникнет магнитное фазовое расслоение. Если пренебречь переходами электронов между квазисвязанными и зонными состояниями, то полная намагниченность образца, помимо спин-поляронного вклада, будет

содержать вклад «голых» ионов марганца. В этом случае при увеличении магнитного поля намагниченность спиновых поляронов должна насыщаться быстрее, поскольку второй вклад будет соответствовать ЛММ с амплитудой  $\sim 1,2\mu_B \ll \mu^*$ . При этом переходы между зонными и квазилокализованными состояниями приведут к уменьшению концентрации спиновых поляронов, а также к некоторой экранировке «голых» ЛММ марганца. Интересно, что константа Кюри, связанная со спин-поляронным вкладом, будет зависеть от соотношения между  $n_e / n_{Mn}$  и  $N_e$ :

$$Ck_B / n_{Mn} = \alpha \mu_{Mn}^2 \quad (n_e / n_{Mn} > N_e), \quad (14)$$

$$Ck_B / n_{Mn} = \alpha \mu_e^2 n_e / n_{Mn} \quad (n_e / n_{Mn} < N_e). \quad (15)$$

В формуле (15) пренебрегаем эффектами электронных переходов, и приведенная оценка может рассматриваться как максимально возможная константа Кюри, обусловленная спиновыми поляронами в случае  $n_e / n_{Mn} < N_e$ . Таким образом, в отличие от теории зонного магнетизма, в рассматриваемой модели константа Кюри несет информацию об амплитуде локализованных магнитных моментов, однако для ее интерпретации требуется привлечение дополнительной информации о концентрации электронов в образце. Как уже отмечалось выше, в случае MnSi для экспериментального значения константы Кюри, найденного в работе [4], и  $\alpha = 1$  оценка с помощью формулы (14) дает величину  $\mu_{Mn} = 1,29\mu_B$ , которая несколько превышает расчетную  $\mu_{Mn} = 1,2\mu_B$  [12], хотя и довольно близка к ней. Поскольку обработка эксперимента в [4] проводилась в приближении одного магнитного вклада, расхождение между расчетным и теоретическим значениями магнитного момента может указывать на то, что в действительности намагниченность MnSi может иметь более сложную структуру. Однако, по-видимому, можно ожидать, что в парамагнитной фазе MnSi значительное число ионов марганца должно участвовать в образовании спиновых поляронов.

Интересно, что возможное магнитное фазовое расслоение не должно оказать существенного влияния ни на амплитуду, ни на частоту магнитного резонанса в MnSi. Выполненный нами расчет динамических магнитных свойств в рамках стандартного квазиклассического подхода [27] показывает, что для спинового полярона следует ожидать единственной ЭПР-подобной моды магнитных колебаний, амплитуда которой задается полной намагниченностью спинового полярона  $M_{1y} + M_{2y}$ , а частота соответствует  $g$ -фактору  $\sim 2$ . Аналогичными характеристиками будет обладать и подсистема «голых» ионов марганца, поэтому в соответствии с экспериментами по магнитному резонансу [4,7] будет наблюдаться одна линия электронного парамагнитного резонанса, амплитуда которой определяется полной намагниченностью образца. В такой си-

туации наибольший интерес представляет анализ ширины линии ЭПР, поскольку характер спиновой релаксации в рассматриваемой системе будет существенно зависеть от соотношения между  $n_{\text{Mn}}$  и  $n_e$ .

### 5. Заключение

Проведенное рассмотрение показывает, что аномальные полевые зависимости намагниченности MnSi могут быть интерпретированы как в спин-поляронной модели, так и в ферронной версии кластерной модели. Однако в случае образования ферронов большие магнитные моменты  $\mu^* \gg \mu_B$  реальны и характеризуют ЛММ в объеме образца, в то время как в спин-поляронной модели параметр  $\mu^* \gg \mu_B$  характеризует взаимодействия внутри спинового кластера. В рамках выбранного нами подхода, особенности магнитных взаимодействий описываются формулой (4) и приводят к сохранению ориентации спинов в магнитном поле, для которой угол  $\theta_1$  остается постоянным и фактически задает наблюдаемые значения эффективного магнитного момента и намагниченности насыщения. При этом амплитуды всех магнитных диполей в образце оказываются порядка магнетона Бора, а гигантские локализованные магнитные моменты отсутствуют. Указанное расхождение, в принципе, позволяет осуществить экспериментальный выбор наиболее адекватной теоретической модели, однако такая проверка требует привлечения методов исследования магнитного состояния на нанометровой шкале. Отметим также, что возникновение нескольких магнитных вкладов в намагниченность сравнимой амплитуды невозможно ни в стандартной зонной теории магнетизма, ни в ферронной модели, и такого рода эффекты можно объяснить только в рамках спин-поляронного описания парамагнитной фазы MnSi. Поэтому экспериментальная проверка возможной сложной структуры намагниченности моносилцида марганца или родственных материалов, например твердых растворов замещения  $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ , могла бы рассматриваться как *experimentum crucis* для спин-поляронной модели. С этой целью несомненный интерес представляет подробное исследование намагниченности в сильных и сверхсильных магнитных полях и в расширенном диапазоне температур. Кроме того, такие эксперименты позволили бы установить как область существования спиновых поляронов на  $B$ - $T$  магнитной фазовой диаграмме, так и оценить энергетические параметры, характеризующие магнитные взаимодействия, которые приводят к образованию спиновых поляронов. При этом, как видно из результатов настоящей работы, интерпретация существующих экспериментальных данных неоднозначна. Например, возникновение линейного вклада в  $M(B)$  в сильном магнитном поле  $\sim 30$  Тл [11] может являться или следствием изменения конфигурации магнитных моментов, образующих спиновый поля-

рон, или результатом магнитного фазового расслоения. Однако независимо от результатов будущих экспериментальных проверок результаты настоящей работы показывают, что парамагнитную фазу MnSi следует рассматривать как фазу, физические свойства которой в низкотемпературной области определяются магнитными неоднородностями на нанометровом пространственном масштабе.

Авторы выражают признательность Д.И. Хомскому и В.В. Глушкову за полезные обсуждения. Работа поддержана грантом РФФИ 13-02-00160 и программами РАН «Электронный спиновый резонанс, спин-зависимые электронные эффекты и спиновые технологии» и «Электронные корреляции в системах с сильным взаимодействием».

1. G.E. Grechnev, A.S. Panfilov, and I.V. Svechkarov, *J. Magn. Mater.* **158**, 711 (1996).
2. A.S. Panfilov, *Fiz. Nizk. Temp.* **25**, (1999) [*Low Temp. Phys.* **25**, 432 (1999)].
3. T. Moriya, *Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo (1985).
4. S.V. Demishev, V.V. Glushkov, I.I. Lobanova, M.A. Anisimov, V.Yu. Ivanov, T.V. Ishchenko, M.S. Karasev, N.A. Samarina, N.E. Sluchanko, V.M. Zimin, and A.V. Semenov, *Phys. Rev. B* **85**, 045131-1-8 (2012).
5. J. Beille, D. Bloch, F. Towfio, and J. Voiron, *J. Magn. Mater.* **10**, 265 (1979).
6. M. Motokawa, S. Kawarazaki, H. Nojiri, and T. Inoue, *J. Magn. Mater.* **70**, 245 (1987).
7. С.В. Демишев, А.В. Семенов, А.В. Богач, В.В. Глушков, Н.Е. Случанко, Н.А. Самарин, А.Л. Чернобровкин, *Письма в ЖЭТФ* **93**, 231 (2011).
8. L. Taillefer, G.G. Lonzarich, and P. Strange, *J. Magn. Mater.* **54-57**, 957 (1986).
9. S.N. Kaul, *J. Phys.: Condens. Matter* **11**, 7597 (1999).
10. S.N. Kaul, *J. Phys.: Condens. Matter* **17**, 5595 (2005).
11. T. Sakakibara, H. Mollmoto, and M. Date, *J. Phys. Soc. Jpn.* **51**, 2439 (1982).
12. M. Corti, F. Carbone, M. Filibian, Th. Jarlborg, A.A. Nugroho, and P. Carretta, *Phys. Rev. B* **75**, 115111 (2007).
13. Э.Л. Нагаев, *Физика магнитных полупроводников*, Наука, Москва (1979).
14. V.G. Storchak, J.H. Brewer, R.L. Lichti, T.A. Lograsso, and D.L. Schlager, *Phys. Rev. B* **83**, 140404(R) (2011).
15. A. Neubauer, C. Pfleiderer, B. Binz, A. Rosch, R. Ritz, P.G. Niklowitz, and P. Boni, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 186602 (2009).
16. M. Lee, Y. Onose, Y. Tokura, and N.P. Ong, *Phys. Rev. B* **75**, 172403 (2007).
17. K. Yosida, *Phys. Rev.* **107**, 396 (1957).
18. R.R. Urbano, P.G. Pagliuso, C. Rettori, S.B. Oseroff, J.L. Sarrao, P. Schlottmann, and Z. Fisk, *Phys. Rev. B* **70**, 140401(R) (2004).

19. J.C. Cooley, M.C. Aronson, L. Sarrao, and Z. Fisk, *Phys. Rev. B* **56**, 14541 (1997).
20. M.L. Brooks, T. Lancaster, S.J. Blundell, W. Hayes, F.L. Pratt, and Z. Fisk, *Phys. Rev. B* **70**, 020401(R) (2004).
21. U. Yu and B.I. Min, *Phys. Rev. B* **74**, 094413 (2006).
22. A.V. Semeno, V.V. Glushkov, A.V. Bogach, N.E. Sluchanko, A.V. Dukhnenko, V.B. Fillippov, N.Yu. Shitsevalova, and S.V. Demishev, *Phys. Rev. B* **79**, 014423 (2009).
23. S.M. Stishov, A.E. Petrova, S. Khasanov, G.Kh. Panova, A.A. Shikov, J.C. Lashley, D. Wu, and T.A. Lograsso, *Phys. Rev. B* **76**, 052405 (2007).
24. V.A. Sidorov, A.E. Petrova, P.S. Berdonosov, V.A. Dolgikh, and S.M. Stishov, *Phys. Rev. B* **89**, 100403(R) (2014).
25. С.В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, Москва (1972).
26. И.А. Квасников, *Термодинамика и статистическая физика. Т. 1: Теория равновесных систем: Термодинамика*, Эдиториал УРСС, Москва (2002).
27. А.Г. Гуревич, Г.А. Мелков, *Магнитные колебания и волны*, Физматлит, Москва (1994).

Anomalous magnetic properties of paramagnetic phase and spin polarons in manganese monosilicide

S.V. Demishev, T.V. Ishchenko, and A.N. Samarin

The field dependence of magnetization of the MnSi has been considered in the paramagnetic phase, which is characterized both

by large effective magnetic moment  $\mu^* = 5.3\mu_B$  and small saturated magnetization  $M_0 = 0.3\mu_B/\text{Mn}$ . The present work shows that the experimental data could be explained neither by the theory of band magnetism, nor by the theory of spin clusters. Spin polaron model, in which spin polaron is treated as quasibonded state of band electron and localized magnetic moment of Mn, is suggested to describe the data. It is found that taking into account of specific interactions in the simple ferrimagnet-like spin configuration allows us to describe the experimental data. This approach shows that observed values of  $\mu^*$  are not related to any large localized moments in the sample bulk. Possible ways for experimental check of the spin polaron model, which include *experimentum crucis*, are analyzed. The results show that the paramagnetic phase of MnSi should be considered as the phase, the physical properties of which are determined by magnetic inhomogeneities at the nanometer scale.

PACS: **75.25.+z** Spin arrangements in magnetically ordered materials;  
**75.30.Cr** Saturation moments and magnetic susceptibilities;  
**75.50.-y** Studies of specific magnetic materials.

Keywords: spin polaron, manganese monosilicide, paramagnetic phase, magnetic inhomogeneities.