

## Анизотропия намагниченности в АФМ и ВСП фазах гексаборида церия

Н. Е. Случанко<sup>1)</sup>+, А. В. Богач<sup>+</sup>, В. В. Глушков<sup>+,\*</sup>, С. В. Демишев<sup>+,\*</sup>, В. Ю. Иванов<sup>+,\*</sup>, Н. Ю. Шицевалова<sup>△</sup>,  
В. Б. Филипов<sup>△</sup>

<sup>+</sup>Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

<sup>\*</sup>Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Московская обл., Россия

<sup>△</sup>Институт проблем материаловедения НАН Украины, 03680 Киев, Украина

Поступила в редакцию 3 июля 2008 г.

На монокристаллических образцах высокого качества в парамагнитной и магнитоупорядоченных фазах гексаборида церия в магнитном поле до 60 кЭ исследованы угловые зависимости намагниченности и холловского сопротивления методом вращения образца в магнитном поле. Показано, что при переходе из антиферромагнитной модулированной в так называемую антиферроквадрупольную фазу  $\text{CeB}_6$  направление легкого намагничивания в плоскости  $[110]$  меняется от  $\langle 100 \rangle$  к  $\langle 110 \rangle$ , причем в указанных магнитоупорядоченных фазах существенно различается характер зависимости амплитуды анизотропной компоненты намагниченности от магнитного поля. Выполненный анализ свидетельствует в пользу формирования состояния с волной спиновой плотности (ВСП-фаза) в интервале температур  $T_N \approx 2.3 \text{ K} < T < T_Q \approx 3.3 \text{ K}$  в гексабориде церия.

PACS: 75.30.Fv, 75.30.Gw, 75.30.Mb

1. Начиная с 60-х годов (см., например, [1]), соединение  $\text{CeB}_6$  вызывает значительный интерес исследователей, поскольку считается классическим примером концентрированной кондо-системы (*dense Kondo system*), в которой, наряду с кондо-компенсацией локализованных магнитных моментов (ЛММ) ионов  $\text{Ce}^{3+}$ , при  $T_Q \approx 3.3 \text{ K}$  возникает необычное антиферроквадрупольное (AFQ) орбитальное упорядочение, сменяющееся с понижением температуры при  $T_N \approx 2.3 \text{ K}$  антиферромагнитной модулированной (AFM) структурой [2, 3] (см. также рис. 1). Однако несмотря на продолжительную историю вопроса (см., например, [1–14]), магнитная структура и характер магнитных взаимодействий в магнитоупорядоченных фазах  $\text{CeB}_6$  вплоть до настоящего времени являются предметом активных дискуссий. Так, на основании результатов магнитного рассеяния нейтронов, данных ЯМР и  $\mu\text{SR}$ -экспериментов в  $\text{CeB}_6$  авторы [11, 12] пришли к заключению о необходимости учета эффектов взаимодействия в системе дипольных, квадрупольных и октупольных Се-моментов при формировании магнитной структуры AFQ-фазы. Полученные методом нерезонансной рентгеновской дифракции в AFQ фазе (интервал II –  $T_N \approx 2.3 \text{ K} < T < T_Q \approx 3.3 \text{ K}$  на рис.1) данные интерпретировались в [13, 14] в терминах обнаружения сложной

магнитоупорядоченной структуры квадрупольных и гексадекапольных моментов  $4f$ -оболочки ионов Се в  $\text{CeB}_6$ . В то же время, в работах [6–8] было обнаружено анизотропное распределение электронной плотности и связанное с этим возникновение дополнительной ( $\sim 30\%$ ) спиновой плотности, расположенной вне Се-центров как в непосредственной окрестности октаэдров бора, так и внутри кластеров  $\text{B}_6$  в матрице гексаборида церия. Авторами [7, 8] было установлено, что эти, не связанные непосредственно с  $^2F_{5/2}$ -состоянием ионов  $\text{Ce}^{3+}$ , области магнитной поляризации сохраняются и в парамагнитной фазе при  $T_Q < T < 10 \text{ K}$  (область I ( $P$ ) на рис.1). Направление поляризации этих доменов наноразмера в  $P$ -фазе  $\text{CeB}_6$  оказывается антипараллельным ЛММ ионов  $\text{Ce}^{3+}$ , в отличие от их сонаправленного расположения в AFQ магнитоупорядоченном состоянии [7, 8]. Напротив, результаты нейтронных исследований в сильных магнитных полях (40–50 кЭ), полученные для фазы II (AFQ) в  $\text{CeB}_6$ , привели авторов [5] к выводу о локализации спиновой плотности исключительно на Се-центрах.

Не менее сложной представляется ситуация и с идентификацией магнитной структуры  $\text{CeB}_6$  в основном состоянии (III (AFM) на рис.1). Так, в [9] обсуждается модель двойной  $\mathbf{k} - \mathbf{k}'$  поперечной синусоидально модулированной магнитной структуры в AFM-фазе  $\text{CeB}_6$  с чередованием слоев ЛММ ионов

<sup>1)</sup>e-mail: nes@lt.gpi.ru

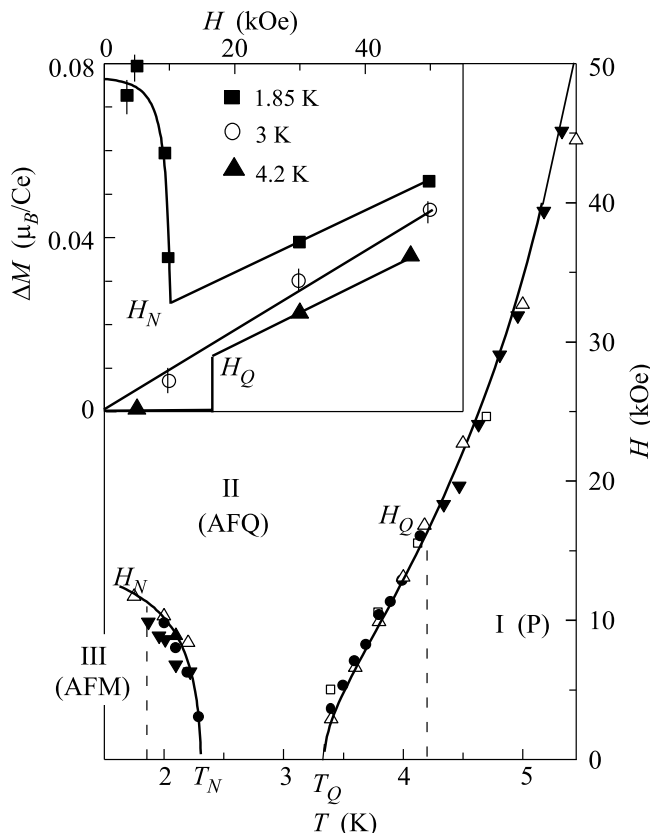


Рис.1. Магнитная фазовая диаграмма гексаборида церия, построенная по результатам измерений намагниченности и магнитосопротивления [16] (I(P) – парамагнитная, II(AFQ) и III(AFM) – магнитоупорядоченные фазы  $\text{CeB}_6$  (см. текст)). На вставке приведены полевые зависимости анизотропной составляющей намагниченности  $\Delta M$  в  $\text{CeB}_6$  для температур 1.85, 3 и 4.2 К. Значения  $H_N$  и  $H_Q$  отвечают напряженности магнитного поля фазовых переходов III-II (при  $T_0 = 1.85$  К) и I-II (при  $T_0 = 4.2$  К)

церия с различающимися в слоях значениями момента на Се, однако предложенная структура не позволяет интерпретировать все наблюдаемые особенности в спектрах магнитной дифракции нейтронов в гексабориде церия. При обсуждении необычной структуры АФМ-фазы  $\text{CeB}_6$  следует отметить также результаты экспериментов по магнитной дифракции нейтронов [4], где, наряду с основными рефлексами, отвечающими элементарной ячейке магнитной структуры с размерами  $(2a, 4a, 4a)$  ( $a(\text{CeB}_6) \approx 4.14 \text{ \AA}$ ) в спектрах магнитного рассеяния нейтронов была обнаружена дополнительная интенсивность, связанная, по мнению авторов [4], с ферромагнитной компонентой магнитной структуры  $\text{CeB}_6$ .

Подход к объяснению необычной природы магнетизма в  $\text{CeB}_6$  сравнительно недавно был предложен авторами [15], где в эксперименте по рассеянию по-

ляризованных нейтронов были получены результаты, свидетельствующие о возникновении заметной спиновой поляризации в  $5d$ -полосе  $\text{CeB}_6$  уже в парамагнитной фазе при  $T \leq 7$  К. Вслед за этим выполненное в [16] комплексное исследование транспортных и магнитных свойств гексаборида церия позволило высказать альтернативное общепринятой интерпретации в терминах магнетизма ЛММ ионов  $\text{Ce}^{3+}$  предположение о зонном характере антиферромагнитного состояния в интервале температур  $T_N \approx 2.3 \text{ К} < T < T_Q \approx 3.3 \text{ К}$  (фаза II (AFQ) на рис.1). Авторами [16] были предложены аргументы в пользу формирования в металлической матрице  $\text{CeB}_6$  волн спиновой плотности (ВСП) при  $T < T_Q$  с последующим переходом при понижении температуры  $T < T_N$  в фазу с конкуренцией ВСП и антиферромагнитного упорядочения ЛММ ионов Се. Следует подчеркнуть, что фазовая диаграмма, подобная представленной на рис.1 для  $\text{CeB}_6$ , с положительным наклоном фазовой границы  $dH/dT/T_c > 0$  была не только теоретически предсказана в [17, 18] для проводников с ВСП-неустойчивостью, но и практически наблюдалась в [18] для квазидвумерного органического проводника с ВСП- $\alpha$ -(BEDT-TTF) $_2\text{KHg}(\text{SCN})_4$ .

Учитывая вышеизложенное, для получения информации о природе необычного низкотемпературного магнетизма  $\text{CeB}_6$  представляет интерес исследовать магнитную анизотропию в этом соединении с сильными электронными корреляциями. Действительно, согласно предсказаниям [17, 18], в случае ВСП механизма амплитуда модуляции магнитной структуры зонного антиферромагнетика должна линейно увеличиваться с ростом напряженности внешнего магнитного поля. В связи с этим представляется важным проведение прецизионных измерений угловых зависимостей намагниченности в широком диапазоне магнитных полей при температурах, отвечающих парамагнитной I (P) и магнитоупорядоченным III (AFM)- и II (AFQ)-фазам (см. рис.1), на монокристаллических образцах высокого качества. Поскольку в случае зонного антиферромагнетика ожидается также возникновение аномального эффекта Холла в  $\text{CeB}_6$  [16], полезная дополнительная информация может быть получена из измерений угловых зависимостей холловского сопротивления при фазовом переходе I-II.

**2.** В работе выполнены прецизионные измерения угловых зависимостей намагниченности и холловского сопротивления в магнитном поле до 60 кЭ при гелиевых температурах 1.85 ÷ 4.2 К в парамагнитной и магнитоупорядоченных фазах  $\text{CeB}_6$ . Используемые для измерений монокристаллы высокого качест-

ва выращены методом вертикального бестигельного индукционного зонного плавления с переплавом в атмосфере инертного газа. Измерения намагниченности  $M(\varphi, H_0, T_0)$  проводились на вибрационном и СКВИД-магнетометрах. Для исследований эффекта Холла применялась экспериментальная установка, аналогичная использовавшейся в [16]. Измерения холловского сопротивления выполнялись методом вращения с пошаговой фиксацией положения образца в магнитном поле сверхпроводящего соленоида.

**3. Анизотропия намагниченности гексаборида церия** исследовалась при температурах  $T_0 = 4.2$  К (фаза I), 3 К (фаза II) и 1.85 К (фаза III) (см. вертикальные штриховые линии на рис.1) в интервале магнитных полей до 60 кЭ, включающем в себя область фазовых переходов III-II и I-II. Приведенные в качестве примера угловые зависимости намагниченности образцов  $\text{CeB}_6$ , полученные при температуре  $T_0 = 1.85$  К  $< T_N(H = 0)$  для магнитных полей в интервале 3.5 ÷ 50 кЭ в II и III-фазах, демонстрируют существенно немонотонный характер (см. рис.2). Для сравнения на рис.2 показана также изотропная кри-

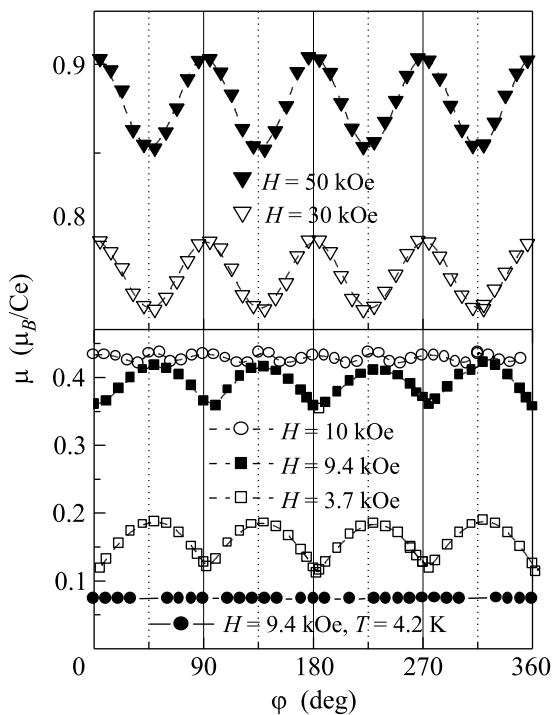


Рис.2. Угловые зависимости приведенной намагниченности  $M(\varphi, H_0, T_0 = 1.85$  К) соединения  $\text{CeB}_6$  ( $H_0 = 3.7, 9.4, 10, 30$  и  $50$  кЭ). Для сравнения на рисунке также представлена изотропная кривая для парамагнитной фазы I(P) ( $H_0 = 9.4$  кЭ,  $T_0 = 4.2$  К). Сплошные и пунктирные вертикальные линии соответствуют кристаллографическим направлениям  $\langle 110 \rangle$  и  $\langle 100 \rangle$  соответственно

вая  $M(\varphi, T_0, H_0)$ , отвечающая парамагнитной фазе I ( $H_0 = 9.4$  кЭ,  $T_0 = 4.2$  К). Отметим, что во всех представленных в работе экспериментах осью вращения образца было выбрано направление  $\langle 001 \rangle$  и, в результате, нами анализировалась магнитная анизотропия, связанная с изменением вектора напряженности магнитного поля между направлениями  $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$  ( $0^\circ$ ) и  $\mathbf{H} \parallel \langle 100 \rangle$  ( $45^\circ$  на рис.2). В соответствии с результатами [19], заметной анизотропии намагниченности  $\text{CeB}_6$  в направлениях  $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$  и  $\mathbf{H} \parallel \langle 111 \rangle$  в работе выявлено не было.

Как видно из данных рис.2, с ростом  $H$  при прохождении фазовой границы III-II ( $H_N \sim 10$  кЭ, см. рис.1) существенно меняется характер магнитной анизотропии  $\text{CeB}_6$ . Наряду с изменением формы угловых зависимостей  $M(\varphi, T_0, H_0)$ , которые в малых полях, отвечающих фазе III (AFM), характеризуются плавными максимумами в направлениях  $\langle 100 \rangle$  и резкими провалами вдоль  $\langle 110 \rangle$  (рис.2, кривые для  $H_0 < 10$  кЭ), при переходе к  $H_0 > H_N$  в фазе II (AFQ) наблюдается синусоидальная зависимость  $M(\varphi, T_0, H_0)$ , сдвинутая по фазе на  $180^\circ$  относительно максимумов исходных кривых. Кроме того, при переходе между фазами III и II меняется характер поведения амплитуды анизотропной составляющей – от  $\Delta M(H) \approx \text{const}$  в фазе III к линейному возрастанию величины эффекта с ростом магнитного поля  $\Delta M \sim H$  в фазе II (см. рис.2 и вставку на рис.1). Аналогично, анизотропный вклад  $\Delta M(H)$  в фазе II линейным образом зависит от внешнего магнитного поля (кривая  $T_0 = 3$  К на вставке к рис.1). Переход из парамагнитной I (P) в так называемую AFQ-фазу (II) также сопровождается возникновением анизотропной составляющей на кривых  $M(\varphi, T_0 = 4.2$  К,  $H_0)$  и ростом в магнитном поле  $H_0 > H_Q$  ее амплитуды  $\Delta M(H)$ . Одновременно при I-II переходе на угловых зависимостях холловского сопротивления  $\rho_H(\varphi, T_0, H_0)$  в полях  $H \geq H_Q$  возникает и возрастает по амплитуде вклад от четных гармоник в эффект Холла (см. рис.3). Отметим, что типичная для парамагнетика гармоническая зависимость вида  $\rho_H(\varphi) \sim \rho_{H1} \cos \varphi$  является следствием изменения нормальной составляющей вектора  $\mathbf{H}$  при вращении образца в магнитном поле (см. рис.3 и вставку). Возникновение при переходе I-II на кривых  $\rho_H(\varphi)$  значительного вклада в холловский сигнал от четных гармоник вида  $\rho_H(\varphi) \sim \rho_{H1} \cos \varphi + \rho_{H2n} \cos(2n\varphi - \varphi_0)$ , где  $n = 1, 2, \dots$ , наблюдалось ранее в системах с сильными электронными корреляциями на основе церия [20, 21] и было связано с особенностями формирования областей спиновой поляризации наноразмера на  $5d$ -состояниях в соединениях  $\text{CeAl}_2$  и  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ .

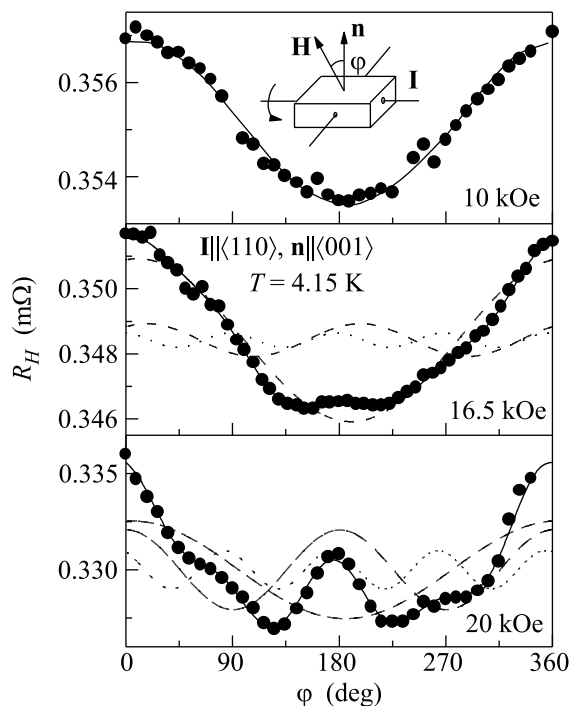


Рис.3. Угловые зависимости холловского сопротивления  $R_H(\varphi)$  гексаборида церия, измеренные при гелиевой температуре для различных значений магнитного поля в интервале 10–20 кЭ в окрестности фазового перехода I-II для направления тока  $I \parallel \langle 100 \rangle$ . Для кривых  $R_H(\varphi)$  в фазе II ( $H_0 = 16.5$  и 20 кЭ) показано также разложение сигнала на четные гармоники

В случае  $\text{CeB}_6$  в фазе II (AFQ), в которой различными методами наблюдается индуцированное внешним полем и усиливающееся с ростом  $H$  антиферромагнитное упорядоченное состояние [22], указанные спин-поляризованные нанодомены (“ферроны” по терминологии [23, 24]), по-видимому, следует связать с формированием пучностей волны спиновой плотности, которая определяет магнитную структуру ( $5d$ -магнетизм) этого необычного магнетика с сильными электронными корреляциями. В результате при гелиевых температурах в зарядовом транспорте  $\text{CeB}_6$  регистрируются особенности, обусловленные магнитной структурой ВСП-состояния. Следует подчеркнуть, что обнаруженное нами резкое изменение характера магнитной анизотропии при переходе в фазу II, сопровождающееся ростом в магнитном поле амплитуды анизотропной составляющей  $\Delta M$ , а также предложенный сценарий магнитного фазового перехода (ВСП в отличие от общепринятого AFQ состояния) согласуются с результатами исследований ЭПР-спектров [25] и позволяет последовательно интерпретировать данные ЯМР,  $\mu\text{SR}$  и нейтронных исследований [2–10] гексаборида церия.

Работа выполнена при финансовой поддержке программы ОФН РАН “Сильнокоррелированные электроны в полупроводниках, металлах, сверхпроводниках и магнитных материалах” и Фонда содействия отечественной науке.

1. Ю. Б. Падерно, Г. В. Самсонов, ДАН СССР **137**, 646 (1961).
2. C. Marceat, D. Jaccard, J. Sierro et al., J. Low Temp. Phys. **78**, 261 (1990).
3. J. M. Effantin, J. Rossat-Mignod, P. Burlet et al., J. Magn. Magn. Mat. **47–48**, 145 (1985).
4. S. Horn, F. Steglich, M. Loewenhaupt et al., Z. Phys. B **42**, 125 (1981).
5. F. Givord, J. X. Boucherle, P. Burlet et al., J. Phys. Cond. Mat. **15**, 3095 (2003).
6. M. Saitoh, N. Okada, E. Nishibori et al., J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 2369 (2002).
7. A. Schenck, F. N. Gygax, and S. Kunii, Phys. Rev. Lett. **89**, 037201 (2002).
8. A. Schenck, F. N. Gygax, G. Solt et al., Phys. Rev. Lett. **93**, 257601 (2004).
9. O. Zacharko, P. Fischer, A. Schenk et al., Phys. Rev. B **68**, 214401 (2003).
10. F. Yakhov, V. Plakhty, H. Suzuki et al., Phys. Lett. A **285**, 191 (2001).
11. R. Shiina, H. Shiba, and P. Thalmeier, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 1741 (1997).
12. R. Shiina, O. Sakai, H. Shiba, and P. Thalmeier, J. Phys. Soc. Jpn. **67**, 3005 (1998).
13. U. Staub, Y. Tanaka, K. Katsumata et al., J. Phys. Cond. Mat. **18**, 11007 (2006).
14. Y. Tanaka, U. Staub, K. Katsumata et al., Europhys. Lett. **68**, 671 (2004).
15. V. Plakhty, L. P. Regnault, A. V. Goltsev et al., Phys. Rev. B **71**, R11510 (2005).
16. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., ЖЭТФ **131**, 133 (2007).
17. G. Montambaux, Phys. Rev. B **38**, 4788 (1988).
18. T. Sasaki, A. Lebed', T. Fukase, and N. Toyota, Phys. Rev. B **54**, 12969 (1996).
19. N. Sato, S. Kunii, I. Oguro, and T. Kasuya, J. Phys. Soc. Jpn. **53**, 3967 (1984).
20. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., ЖЭТФ **125**, 906 (2004).
21. D. N. Sluchanko, V. V. Glushkov, S. V. Demishev et al., Physica B **403**, 1268 (2008).
22. K. Hanzawa and T. Kasuya, J. Phys. Soc. Jpn. **53**, 1809 (1984).
23. Э. Л. Нагаев, Письма в ЖЭТФ **6**, 484 (1967).
24. М. Ю. Каган, К. И. Кугель, Д. И. Хомский, ЖЭТФ **120**, 470 (2001).
25. S. V. Demishev, A. V. Bogach, A. V. Semeno et al., J. Magn. Magn. Mat. **300**, e534 (2006).