

## Магнитосопротивление и магнитные фазовые переходы в антиферромагнетике $\text{Pr}^{11}\text{V}_6$

Н. Е. Случанко<sup>+</sup>, М. А. Анисимов<sup>+\*</sup>, В. В. Глушков<sup>+\*</sup>, С. В. Демишев<sup>+</sup>, В. Б. Филипов<sup>∇</sup>, Н. Ю. Шицевалова<sup>∇</sup>,  
А. В. Кузнецов<sup>+□</sup>

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

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

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

<sup>□</sup>Московский инженерно-физический институт, 115409 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 июня 2009 г.

На изотопически чистых монокристаллических образцах гексаборида празеодима ( $\text{Pr}^{11}\text{V}_6$ ) выполнены измерения поперечного магнитосопротивления  $\Delta\rho/\rho$  в диапазоне температур 2–20 К в магнитном поле до 80 кЭ. Результаты исследований полевых и угловых зависимостей  $\Delta\rho/\rho(H, \varphi, T_0)$  обнаруживают новую магнитную фазу в АФМ состоянии  $\text{Pr}^{11}\text{V}_6$ , наблюдающуюся только для ориентации внешнего магнитного поля в узком диапазоне углов вблизи  $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$ . Полученные данные снимают существовавшие ранее противоречия в представлении магнитной фазовой диаграммы  $\text{Pr}^{11}\text{V}_6$  и находят объяснение в предположении об участии в формировании сложной магнитной структуры в АФМ состоянии гексаборида празеодима спин-поляризованных областей (ферронов) в  $5d$ -полосе в окрестности редкоземельных ионов.

PACS: 72.15.–v

1. В последнее время значительный интерес исследователей привлекает изучение особенностей формирования основного состояния гексаборида празеодима [1–3], являющегося антиферромагнетиком (АФМ) с достаточно сложной магнитной фазовой диаграммой [4, 5], несмотря на простую оцк кристаллическую структуру. В отсутствие внешнего магнитного поля в  $\text{PrV}_6$  с понижением температуры наблюдаются два магнитных фазовых перехода при  $T_N = 6.7\text{--}7.1\text{ К}$  и  $T_M = 3.9\text{--}4.6\text{ К}$  [1–8], причем в парамагнитной фазе в интервале 7–20 К регистрируется критическое поведение параметров (см., например, [9]), отвечающее формированию ближнего магнитного порядка в этом соединении. Наряду с отмеченным выше заметным разбросом значений  $T_N$  и  $T_M$ , полученных различными экспериментальными методами на образцах, отличающихся как изотопическим составом, так и способом синтеза монокристаллов, существует также известное противоречие между данными различных авторов (см. [4, 5]) о расположении фазовой границы  $T_M(H)$  для ориентации внешнего магнитного поля  $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$ . Действительно, как видно из данных [4, 5], представленных на рис.1а, полученные при измерениях намагниченности и магнитострикции [4] и продольного магнитосопротивления [5] на одних и тех же образцах  $\text{PrV}_6$  кривые  $T_M(H)$ , отвечающие переходу из соразмерной

коллинеарной ( $C_N$ ) в несоразмерную ( $IC$ ) магнитную структуру, значительно (на 30–50 кЭ при  $T < 4\text{ К}$ ) различаются для  $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$ . Кроме того, вплоть до настоящего времени не выяснен тип фазового перехода в магнитном поле и механизм, приводящий к перестройке магнитной структуры в этом соединении.

В связи с этим представляет интерес выполнить исследования широкой окрестности фазового перехода из АФМ соразмерной коллинеарной в несоразмерную фазу на монокристаллических образцах  $\text{PrV}_6$ . С этой целью нами исследовалось поведение поперечного магнитосопротивления  $\text{PrV}_6$  на монокристаллических образцах высокого качества с содержанием изотопа  $^{11}\text{V}$  не менее 99.5%. Измерения проводились в интервале температур 1.8–20 К в магнитном поле до 80 кЭ с использованием техники вращения образца с пошаговой фиксацией его положения в магнитном поле [10]. Контроль качества образцов осуществлялся при помощи рентгеноструктурного и оптического спектрального методов, а также при измерениях температурных зависимостей удельного сопротивления  $\rho(T)$  и магнитной восприимчивости  $\chi(T)$  (см. рис.1б).

2. Как видно из данных рис.1б, переходам при  $T_N \approx 6.7\text{ К}$  и  $T_M \approx 4.6\text{ К}$  отвечает резкое падение удельного сопротивления и уменьшение магнитной восприимчивости с понижением температуры в со-

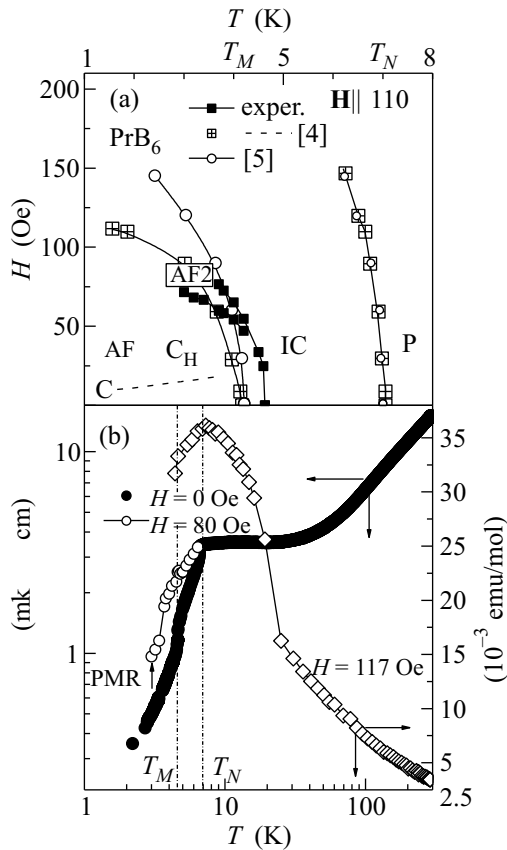


Рис.1. (а) Магнитная  $H$ - $T$ -фазовая диаграмма для  $\text{Pr}^{11}\text{B}_6$  [4, 5] и (б) температурные зависимости удельного сопротивления (в магнитном поле  $H = 0$  кЭ и 80 кЭ) и магнитной восприимчивости в магнитном поле  $H = 117$  Э. С( $C_H$ ) – соразмерные, IC – несоизмерная, P – парамагнитная, AF(AF2) – антиферромагнитная модулированная фазы

ответствии с результатами [4, 5]. Небольшие различия в значениях  $T_N$  и  $T_M$ , полученных в настоящей работе и авторами [4, 5], определяются использованием нами изотопически чистого гексаборида празеодима  $\text{Pr}^{11}\text{B}_6$  (см., например, [3]). Следует подчеркнуть, что в АФМ фазе  $\text{PrB}_6$  наблюдается эффект положительного магнитосопротивления (PMR на рис.1b), амплитуда которого зависит от направления внешнего магнитного поля.

На рис.2а представлены полевые зависимости поперечного магнитосопротивления в  $\text{PrB}_6$ , полученные для направления измерительного тока  $\mathbf{I} \parallel \langle 1\bar{1}0 \rangle$  в магнитном поле  $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$ . При  $T_0 = 5$  К в используемом нами диапазоне магнитных полей  $H \leq 80$  кЭ кривая  $\Delta\rho/\rho(H, T_0)$  соответствует несоизмерной АФМ-фазе  $\text{PrB}_6$  (IC на рис.1а), тогда как с понижением температуры в интервале  $T < T_M \approx 4.6$  К

на полевых зависимостях магнитосопротивления появляется особенность, отвечающая магнитному фазовому переходу  $C_H$ -IC. Следует подчеркнуть также значительный гистерезис зависимостей  $\Delta\rho/\rho(H, T_0)$  в окрестности особенности, амплитуда которого достигает значений  $A = \Delta\rho/\rho|_{H\downarrow} - \Delta\rho/\rho|_{H\uparrow} \approx 24\%$ .

Высокая точность измерений сопротивления и стабилизации температуры позволила нам применить процедуру численного дифференцирования магнитосопротивления и далее перейти к анализу производных  $d(\Delta\rho/\rho)/dH$  (см. рис.2б). Отметим в результате, что при  $T_0 \leq 4.4$  К на кривых отчетливо регистрируются две близкие особенности, отвечающие магнитным фазовым переходам в магнитном поле (показаны стрелками на рис.2б). Как видно из данных рис.2б, в интервале  $T_0 \leq 3$  К резкий пик большой амплитуды на зависимостях  $d(\Delta\rho/\rho)/dH = f(H, T_0)$ , соответствующий верхнему фазовому переходу, смещается за пределы используемого в работе диапазона магнитных полей. Отмеченные стрелками особенности на кривых  $d(\Delta\rho/\rho)/dH = f(H, T_0)$  позволяют восстановить реальный вид  $H$ - $T$ -диаграммы  $\text{PrB}_6$  и обнаруживают новую магнитную фазу (AF2), располагающуюся на границе между соразмерной коллинеарной ( $C_H$ ) и несоизмерной (IC) фазами гексаборида празеодима для ориентации  $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$  (см. рис.1а). Выполненные нами измерения магнитосопротивления для других ориентаций (см., например, кривую  $T = 3.7$  К для  $\mathbf{H} \parallel \langle 100 \rangle$  на рис.2а) приводят к выводу о значительной анизотропии  $H$ - $T$ -фазовой диаграммы и отсутствию указанной фазы AF2 для основных направлений  $\mathbf{H}$ , отличных от  $\langle 110 \rangle$ .

С целью дополнительной проверки существования новой магнитной фазы в  $\text{PrB}_6$  нами исследовались также угловые зависимости поперечного магнитосопротивления в различных магнитных полях при гелиевых температурах. Для примера на рис.3 показано семейство кривых  $\rho(\varphi)/\rho(0)$  для  $T_0 = 4.2$  К. Как видно из данных рис.3, в поле  $H < 40$  кЭ зависимости  $\rho(\varphi)/\rho(0)$  с достаточной точностью аппроксимируются соотношением  $\rho(\varphi) \sim \cos 2\varphi$ , отвечающим характерному для кристалла кубической симметрии слабо анизотропному ( $(\rho_{\langle 110 \rangle} - \rho_{\langle 100 \rangle})/\rho_{\langle 100 \rangle} \leq 10\%$ ) поведению четного по магнитному полю поперечного магнитосопротивления. При изменении направления магнитного поля от  $\varphi \approx 0$  ( $\mathbf{H} \parallel \langle 100 \rangle$ ) до  $\varphi \approx 90^\circ$  ( $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$ ) на кривых магнитосопротивления в интервале полей  $H > 40$  кЭ в узком диапазоне углов  $84 \pm 8^\circ$  появляется дополнительный вклад большой амплитуды ( $\rho(\varphi)/\rho(0) \sim 50\%$ ), отвечающий фазовому переходу  $C_H$ -AF2 и характеризующийся заметным гистерезисом, связанным со сменой направления изменения

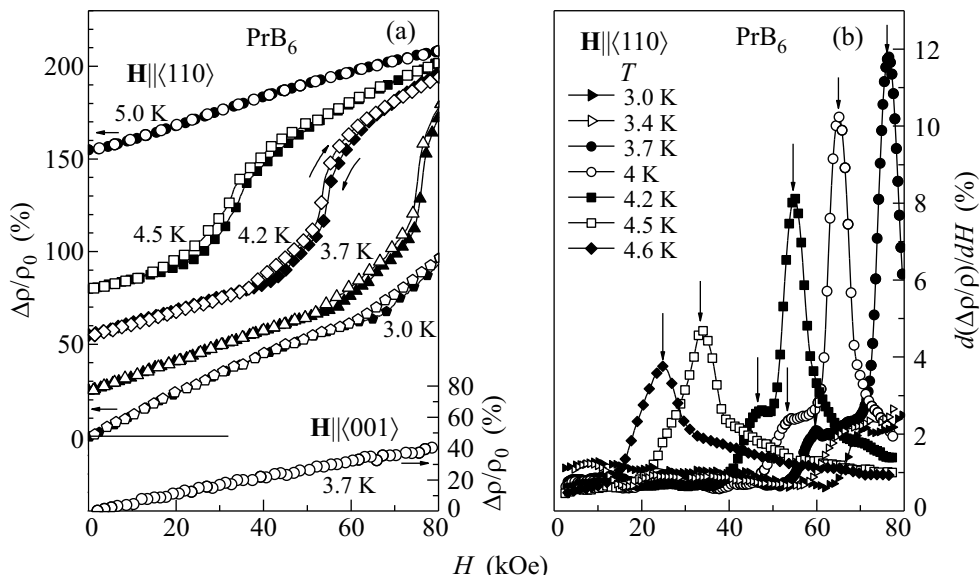


Рис.2. Полевые зависимости (а) поперечного магнитосопротивления для ориентаций магнитного поля  $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$  и  $\mathbf{H} \parallel \langle 001 \rangle$  и (б) производной магнитосопротивления по магнитному полю

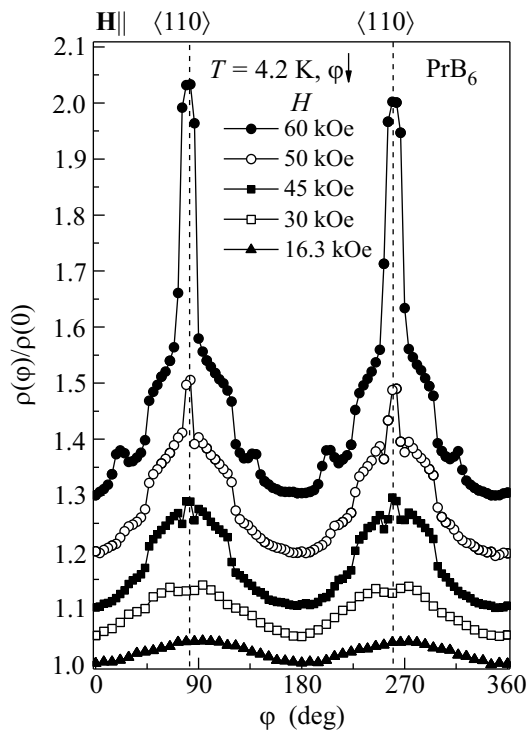


Рис.3. Угловые зависимости поперечного магнитосопротивления  $\text{Pr}^{11}\text{B}_6$  при гелиевой температуре в ориентации измерительного тока  $\mathbf{I} \parallel \langle 110 \rangle$

угла  $\varphi$  между  $\mathbf{H}$  и вектором нормали  $\mathbf{n}$  к плоскости  $[110]$ .

3. Таким образом, обнаруженная нами при измерениях поперечного магнитосопротивления

$\text{PrB}_6$  (рис.2, 3) новая магнитоупорядоченная фаза располагается между коллинеарной соразмерной  $C_H$  и несоизмерной IC фазами (рис.1а). Значительный гистерезис на полевых и угловых зависимостях  $\Delta\rho/\rho(H, \varphi, T_0)$  свидетельствует в пользу реализации двух фазовых переходов 1-го рода –  $C_H$ -AF2 и AF2-IC для направления вблизи  $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$  в гексабориде празеодима. При этом с учетом орбитального вырождения  ${}^3H_4$ -состояния  $\text{PrB}_6$  (основное состояние –  $\Gamma_5$ -триплет [11]) описание сложной  $H$ - $T$ -диаграммы и магнитной структуры  $C$ -, IC- и AF2-фаз, а также значительной магнитной анизотропии с помощью мультипольных взаимодействий [1, 4–6] противоречит полученным авторами [12, 13] результатам исследований магнитной дифракции в  $\text{GdB}_6$ . Действительно, в [12, 13] была установлена аналогичная наблюдаемой в  $\text{PrB}_6$  в IC-фазе неколлинеарная магнитная структура с вектором  $\mathbf{k} = (1/4; 1/4; 1/2)$  для  $\text{GdB}_6$ , в котором  $4f$ -орбитальное вырождение отсутствует ( ${}^8S_{7/2}$ -состояние РЗ-иона). В такой ситуации возникновение общего для антиферромагнетиков  $\text{RB}_6$  “мотива” в магнитной структуре следует связать с особенностями строения поверхности Ферми, которая достаточно слабо меняется в ряду трехвалентных РЗ гексаборидов. В частности, в [14] для  $\text{GdB}_6$  в приближении сильной связи было показано, что электрон-электронное взаимодействие приводит к возникновению максимума динамической восприимчивости  $\chi(q)$  в окрестности  $\mathbf{q} = (1/4; 1/4; 1/2)$  в зоне Бриллюэна, который отвечает поляризации  $2p$ - и  $5d$ -состояний

зоны проводимости. Обусловленное максимумом  $\chi(q)$  взаимодействие благоприятствует магнитному упорядочению вблизи  $\mathbf{q} = (1/4; 1/4; 1/2)$ , причем вследствие асимметричного характера особенности  $\chi(q)$ , по мнению авторов [14], объяснение получает также несоразмерный тип магнитной структуры в IC-фазе PrB<sub>6</sub>.

Формирование спин-поляризованных областей в матрице соединений RB<sub>6</sub> [7, 15] приводит к необходимости учета, наряду с РККИ-взаимодействием, также взаимодействия локализованных магнитных моментов (ЛММ) 4*f*-оболочек редкоземельных ионов через локальную спиновую поляризацию 5*d*-состояний зоны проводимости. Следует отметить, что на существование спин-поляризованных состояний в PrB<sub>6</sub> указывают также формирование ближнего магнитного порядка при  $T \geq T_N$  [9] и эффект квадратичного отрицательного магнитосопротивления в парамагнитной фазе PrB<sub>6</sub> [7]. По нашему мнению, именно взаимодействие ЛММ R<sup>3+</sup> через спин-поляризованные 5*d*-состояния является фактором, определяющим магнитную анизотропию в ряду RB<sub>6</sub>. Отметим в этой связи результаты исследований рентгеновского резонансного рассеяния в PrB<sub>6</sub> [3], которые позволили обнаружить возникновение структурных искажений вблизи  $T_M \approx 4.5$  К при переходе с понижением температуры от несоразмерной к соразмерной магнитоупорядоченной фазе. В частности, авторы [3] подчеркивают, что используемая ими методика резонансной рентгеновской спектроскопии регистрирует именно распределение спиновой плотности 5*d*-электронных состояний, которые поляризуются при магнитном упорядочении ЛММ 4*f*-орбиталей и модифицируют магнитную структуру соразмерной фазы PrB<sub>6</sub>.

Учитывая характер гистерезиса на угловых и полевых зависимостях магнитосопротивления ниже  $T_M$  (рис.2), следует предположить, что новая фаза характеризуется наличием ферромагнитной компоненты. К аналогичному выводу приводят также результаты исследований PrB<sub>6</sub> и NdB<sub>6</sub> [7, 16] с разделением вкладов в магнитосопротивление, на основании которых в [16] был сделан вывод об образовании магнитных кластеров наноразмера из ЛММ R<sup>3+</sup> ионов и 5*d*-ферронов как в парамагнитной фазе RB<sub>6</sub> вблизи  $T_N$ , так и в несоразмерной фазе PrB<sub>6</sub>.

Суммируя вышеизложенное, отметим, что обнаруженная нами новая магнитная фаза в антиферромагнетике с оцк кристаллической структурой PrB<sub>6</sub>, а также результаты выполненных ранее исследований гексаборида празеодима позволяют сделать вывод о существенной роли локальной спиновой поляризации 5*d*-электронных состояний не только в зарядовом транспорте, но и в формировании сложной магнитной структуры в PrB<sub>6</sub>.

Работа выполнена при поддержке программы ОФН РАН "Сильнокоррелированные электроны в полупроводниках, металлах, сверхпроводниках и магнитных материалах".

1. H. Iwakubo, S. Ikeda, Y. Kishino et al., Phys. Rev. B **78**, 012409 (2008).
2. J. M. Mignot, G. Andre, J. Robert et al., Phys. Rev. B **78**, 01415 (2008).
3. H. C. Walker, K. A. McEwen, D. F. McMorrow et al., Phys. Rev. B **79**, 054402 (2009).
4. M. Sera, M.-S. Kim, H. Tou, and S. Kunii, J. Phys. Soc. Jpn. **73**, 3422 (2004).
5. S. Kobayashi, M. Sera, M. Hiroi et al., J. Phys. Soc. Jpn. **70**, 1721 (2001).
6. P. Morin, S. Kunii, and T. Kasuya, J. Magn. Magn. Mat. **96**, 145 (1991).
7. M. A. Anisimov, A. V. Bogach, V. V. Glushkov et al., J. Phys.:Conf. Ser. **150**, 042005 (2009).
8. M. Sera, S. Kobayashi, M. Hiroi et al., Phys. Rev. B **54**, R5207 (1996).
9. S. Takagi, S. Itabashi, S. Kunii, and T. Kasuya, J. Magn. Magn. Mat. **52**, 267 (1985).
10. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., ЖЭТФ **125**, 906 (2004).
11. M. Loewenhaupt and M. Prager, Z. Phys. B **62**, 195 (1986).
12. M. Amara, S. E. Luca, R.-M. Galéra et al., Phys. Rev. B **72**, 064447 (2005).
13. K. Kuwahara, R. Yamamoto, M. Kohgi et al., Physica B **359-361**, 965 (2005).
14. Y. Kuramoto and K. Kubo, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 2633 (2002).
15. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., ЖЭТФ **131**, 133 (2007).
16. М. А. Анисимов, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., ЖЭТФ (2009) в печати.