## Скейлинг магнитосопротивления и анизотропия рассеяния носителей заряда в парамагнитной фазе каркасного стекла Ho<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub>

Н. Е. Случанко<sup>*a,b1*</sup>, А. Л. Хорошилов<sup>*a,b*</sup>, А. В. Богач<sup>*a*</sup>, В. В. Воронов<sup>*a*</sup>, В. В. Глушков<sup>*a,b*</sup>, С. В. Демишев<sup>*a,b*</sup>, В. Н. Краснорусский<sup>*a*</sup>, К. М. Красиков<sup>*b*</sup>, Н. Ю. Шицевалова<sup>*c*</sup>, В. Б. Филипов<sup>*c*</sup>

 $^{a}$ Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

<sup>b</sup> Московский физико-технический институт (Госуниверситет), 141700 Долгопрудный, Россия

 $^{c}$ Институт проблем материал<br/>оведения им. И.Н. Францевича НАНУ, 03680 Киев, Украина

Поступила в редакцию 9 ноября 2017 г.

При низких температурах 2–10 К исследовано поперечное магнитосопротивление додекаборида  $Ho_{0.8}Lu_{0.2}B_{12}$  со структурой каркасного стекла. Показано, что в парамагнитной фазе в широкой окрестности  $T_N \approx 5.7$  К в этом антиферромагнетике доминирующим вкладом является изотропное отрицательное магнитосопротивление, связанное с рассеянием носителей на наноразмерных кластерах ионов  $Ho^{3+}$ , которое масштабируется в координатах  $\rho = f(\mu_{\rm eff}^2 H^2/T^2)$ . Обнаружено, что анизотропия магнитосопротивления выше  $T_N$  (около 15% в поле 80 кЭ) обусловлена положительным вкладом, который достигает максимальных значений для направлений вблизи  $\mathbf{H} \| [001]$ . Предложено объяснение анизотропии рассеяния носителей заряда в терминах динамического кооперативного эффекта Яна–Теллера на кластерах  $B_{12}$ .

DOI: 10.7868/S0370274X18010071

1. Соединения *d*- и *f*-элементов с колоссальным магнитосопротивлением (КМС) привлекают интерес исследователей как с точки зрения выяснения механизмов, приводящих к эффекту КМС, так и благодаря перспективам их практического применения [1]. Классическими представителями класса соединений с КМС являются манганиты [2, 3] кобальтиты [4], двойные перовскиты [5], твердые растворы на основе гексаборида европия [6] и другие системы, в которых магнитосопротивление достигает максимальных значений в непосредственной близости от магнитного фазового перехода. В последние годы активно обсуждается возможность существования единого механизма КМС и, в частности, высказываются предположения об определяющей роли структурных дефектов и неоднородностей различной природы, приводящих к электронному фазовому расслоению, формированию магнитных кластеров нанометрового размера и областей спиновой поляризации в этих материалах [3]. Недавно в работе [7] было показано, что каркасные стекла Ho<sub>x</sub>Lu<sub>1-x</sub>B<sub>12</sub> с позиционным беспорядком в расположении ионов Ho<sup>3+</sup> и беспорядком замещения Но-Lu могут использоваться, как удобные модельные объекты для изучения ме-

ханизмов возникновения большого отрицательного магнитосопротивления (OMC) в парамагнитной (P) фазе вблизи температуры Нееля T<sub>N</sub>. Выполненные в [7] исследования различных составов  $Ho_x Lu_{1-x} B_{12}$  с  $x \le 0.5$  для магнитного поля  $\mathbf{H} \| [001]$  позволили связать ОМС в окрестности  $T_{\rm N}$  в Р-фазе с рассеянием носителей на антиферромагнитных (AF) кластерах наноразмера (области ближнего АF порядка), образованных из ионов Ho<sup>3+</sup>, а также предложить процедуру разделения вкладов в магнитосопротивление. В то же время, открытым остается вопрос о возможной анизотропии ОМС и других вкладов в магнитосопротивление, их детальном описании и получении количественных характеристик для различных направлений магнитного поля в этих модельных разупорядоченных системах с магнитными нанокластерами.

В настоящей работе представлены результаты измерений поперечного магнитосопротивления монокристаллов Ho<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> для различных направлений внешнего магнитного поля в широкой окрестности антиферромагнитного фазового перехода ( $T_{\rm N} \approx 5.7$  K). Впервые показано, что рассеяние носителей заряда на AF-кластерах в P-фазе, определяющее эффект большого (15–30 %) ОМС, в пределах экспериментальной точности является изотропным и масштабируется в координатах  $\rho = f(\mu_{\rm eff}^2 H^2/T^2)$ . Об-

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

наружено, что значительная анизотропия магнитосопротивления обусловлена исключительно положительным квадратичным вкладом, который в сильных магнитных полях для направления **H**||[001] становится сравнимым с OMC.

2. В работе представлены результаты исследований удельного сопротивления на постоянном токе **I**||[110] для монокристаллических образцов Но<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> высокого качества. Измерения выполнены в интервале температур 1.9-12 К для различных поперечных ориентаций  $\mathbf{I} \perp \mathbf{H}$  внешнего магнитного поля напряженностью до 80 кЭ методом пошагового вращения с фиксацией положения образца [8]. Для характеризации кристаллов применялись рентгеноструктурный анализ и микроанализ, а также проводились измерения магнитной восприимчивости и теплоемкости на коммерческих установках Quantum Design MPMS-5 и PPMS-9 соответственно. Используемые в работе монокристаллы Но<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> были выращены методом индукционного зонного плавления в атмосфере инертного газа в ИПМ НАНУ [9].

**3.** На рис. 1 показаны температурные зависимости удельного сопротивления  $\rho(T)$  одного из кристаллов Ho<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> в отсутствии внешнего магнитного поля и в поле 80 кЭ в направлении **H**||[001]. Для сравнения показана также кривая  $\rho(T)$  немагнитного аналога, – соединения LuB<sub>12</sub>. Кривая  $\rho(T, H = 0)$  в окрестности магнитного фазового перехода при  $T_{\rm N} \approx 5.7$  К показана на вставке к рис. 1, где представлены также температурные зависимости магнитной восприимчивости  $\chi(T)$  и магнетосопротивления  $\Delta \rho / \rho(T)$ . Как следует из рис. 1, в широкой окрестности  $T_{\rm N}$  наблюдается эффект ОМС, амплитуда которого в поле 80 кЭ для **H**||[001] составляет ~ 15 %.

Полученное в работе семейство полевых зависимостей удельного сопротивления для трех различных ориентаций внешнего магнитного поля относительно осей в кристалле,  $-\mathbf{H} \| [001], \mathbf{H} \| [110]$  и  $\mathbf{H} \| [111]$ в координатах  $\rho = f(H^2/T^2)$  приведено на рис. 2а– с. Данные магнитосопротивления в Р-фазе показаны крупными сплошными, а в АF-состоянии – мелкими открытыми символами. Как видно из рис. 2а-с, для направлений поля вдоль диагоналей [110] и [111] величина ОМС в сильном поле в парамагнитном состоянии составляет около 30%, значительно превышая эффект для  $\mathbf{H} \| [001] (\sim 15 \%)$  и, тем самым, демонстрируя значительную анизотропию поперечного магнитосопротивления. Подчеркнем также, что в отличие от исследовавшейся ранее в [7,10] конфигурации  $\mathbf{H} \| [001]$ , для ориентаций  $\mathbf{H} \| [110]$  и  $\mathbf{H} \| [111]$ 



Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурные зависимости удельного сопротивления  $\rho(T)$  додекаборида  $\operatorname{Ho}_{0.8}\operatorname{Lu}_{0.2}\operatorname{B}_{12}$  в отсутствии внешнего магнитного поля и в поле 80 кЭ. Для сравнения приведена также кривая  $\rho(T, H = 0)$  для LuB<sub>12</sub>. На вставке для Ho<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> в увеличенном масштабе показаны кривая  $\rho(T, H = 0)$  в окрестности AF-перехода ( $T_{\mathrm{N}} = 5.7 \,\mathrm{K}$ ), температурная зависимость магнитной восприимчивости  $\chi(T)$  и магнитосопротивления  $\Delta \rho / \rho(T, H = 80 \,\mathrm{K})$ 

эффект ОМС в парамагнитном состоянии является доминирующим, причем изменение сопротивления с полем и температурой в координатах  $\rho = f(H^2/T^2)$ оказывается универсальным (см. рис. 2b, c).

Для изучения анизотропии поперечного магнитосопротивления  $\Delta \rho / \rho$  в парамагнитной фазе Ho<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> в настоящей работе при T = 6.5 K исследовались (а) полевые зависимости при различных значениях угла  $\varphi$  между нормалью  $\mathbf{n} \| [001]$ к поверхности кристалла и магнитным полем **H** ( $\varphi = \mathbf{n}^{\wedge} \mathbf{H}$ , см. вставку на рис. 3b), а также (b) в поле H = 80 к $\Im$  измерялась угловая зависимость



Рис. 2. (Цветной онлайн) Полевые зависимости удельного сопротивления  $\text{Ho}_{0.8}\text{Lu}_{0.2}\text{B}_{12}$  в координатах  $\rho(H^2/T^2)$  для температур 2–10 K при различных ориентациях магнитного поля относительно трех главных кристаллографических направлений: (a) –  $\mathbf{H} \parallel [001]$ , (b) –  $\mathbf{H} \parallel [110]$  и (c) –  $\mathbf{H} \parallel [111]$ . Сплошные линии отвечают аппроксимации ОМС-вклада в магнетосопротивление квадратом функции Ланжевена  $L^2(H/T)$  с  $\mu_{\text{eff}} \approx 3.5\mu_{\text{B}}$ . Пунктирные линии – примеры аппроксимации сопротивления в сильных полях соотношением  $\rho \sim \mu_{\text{D}}^2 H^2$  (см. текст). На панели (d) в качестве примера приведено масштабирование (скейлинг) ОМС в координатах  $\rho(\mu_{\text{eff}}^2 H^2/T^2)$  для  $\mathbf{H} \parallel [111]$ 

магнитосопротивления. Данные полевых и угловых измерений  $Ho_{0.8}Lu_{0.2}B_{12}$  представлены на рис. 3b и 3d соответственно. Для сравнения на рис. 3a, с приведены также кривые магнитосопротивления для немагнитного аналога –  $LuB_{12}$ . Легко видеть, что в интервале  $\varphi = 54-126^{\circ}$ , отвечающем диагоналям  $\mathbf{H} \parallel [110]$  и  $\mathbf{H} \parallel [111]$ , значения  $\Delta \rho / \rho$  в  $Ho_{0.8}Lu_{0.2}B_{12}$  слабо зависят от угла, тогда как в пироком диапазоне направлений ( $\pm 50^{\circ}$ ) в окрестности  $\mathbf{H} \parallel [001]$  наблюдается изменение параметра  $\Delta \rho / \rho$  приблизительно на 15% (рис. 3). Анизотропия магнитосопротивления для  $Ho_{0.8}Lu_{0.2}B_{12}$  наиболее наглядно представлена в полярных координатах на рис. 4, где видно, что области с наименьшими абсолютными значениями  $\Delta \rho / \rho$  ( $\leq 15 \%$ ) формируют каналы с преимущественным направлением **H** $\|[001]$ .

4. В рамках подхода, предложенного в [7], отрицательное магнитосопротивление в модельной системе  $\operatorname{Ho}_{x}\operatorname{Lu}_{1-x}\operatorname{B}_{12}$ , как и в соединениях с КМС [3], в парамагнитной фазе описывается соотношением  $\Delta \rho / \rho \sim M^2$  (M – намагниченность на носителе заряда), причем наилучшее приближение при аппроксимации ОМС достигается при использовании для намагниченности ланжевеновской зависимости вида  $\Delta \rho / \rho \sim L^2(x)$  (функция Ланжевена  $L(x) = \operatorname{cth}(x) - 1/x$ ,  $x = \mu_{\mathrm{eff}}H/k_{\mathrm{B}}T$ ,  $k_{\mathrm{B}}$  – постоянная Больцмана,  $\mu_{\mathrm{eff}}$  – эффективный магнитный момент магнитных областей рассеяния). Кроме того, для



Рис. 3. (Цветной онлайн) (a)–(b) – Полевые зависимости магнетосопротивления LuB<sub>12</sub> и Ho<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> при температурах 40 K и 6.5 K соответственно. На вставке к панели (b) изображена схема эксперимента: измерительный ток I через образец направлен вдоль оси [110], угол  $\varphi = H \wedge \mathbf{n}$  варьировался при вращении кристалла в поперечной геометрии магнитосопротивления  $\mathbf{H} \| (110)$ . (c)–(d) – Угловые зависимости магнетосопротивления LuB<sub>12</sub> и Ho<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> в поле 80 кЭ при температурах 40 K и 6.5 K соответственно

описания большого положительного вклада в магнитосопротивление, наблюдающегося в Р-фазе соединений  $\mathrm{Ho}_x\mathrm{Lu}_{1-x}\mathrm{B}_{12}$  с  $x \leq 0.5$  в сильных магнитных полях Н [[001], в [7] использовалось стандартное соотношение  $\Delta \rho / \rho = \mu_{\rm D}^2 H^2$ , где  $\mu_{\rm D}$  – дрейфовая подвижность носителей. В рамках такой процедуры разделения вкладов в настоящей работе был выполнен анализ данных рис. 2-3 для различных направлений внешнего поля и, в результате, получены значения  $\mu_{\rm eff}$  эффективного момента AF-областей ближнего магнитного порядка и дрейфовой подвижности µ<sub>D</sub>. Подчеркнем, что анализ ОМС (на рис. 2а-с сплошными линиями показана аппроксимация данных единой ланжевеновской зависимостью с  $\mu_{\rm eff}$  =  $= 3.5 \mu_{\rm B}$ , на рис. 2а пунктиром представлено приближение зависимостью  $ho \sim \mu_{\rm D}^2 H^2)$  для различных  $T_0$ в интервале 4.2–10 К приводит к значениям  $\mu_{\text{eff}}$  =

=  $2.8-3.6\mu_{\rm B}$  при совпадении для каждого  $T_0$  в пределах точности используемого приближения величины  $\mu_{\rm eff}$  для всех трех направлений магнитного поля, что свидетельствует об изотропном рассеянии носителей на магнитных кластерах ионов Ho<sup>3+</sup>.

В результате перестроение кривых в координатах  $\rho/\rho_0 = f(\mu_{\text{eff}}^2 H^2/T^2)$  позволяет получить скейлинг отрицательного магнитосопротивления (см., например, рис. 2d для **H**||[111]). При этом как отклонения от кривой скейлинга, так и анизотропия поперечного магнитосопротивления в сильном поле оказываются обусловленными исключительно положительной компонентой в  $\Delta \rho/\rho$ , которая достигает максимальных значений для направления **H**||[001], причем характер угловой зависимости  $\Delta \rho/\rho(\varphi)$  является общим для магнитного и немагнитного додекаборидов (для сравнения см. рис. 3с и d).



Рис. 4. (Цветной онлайн) Анизотропия магнетосопротивления в парамагнитной фазе  $Ho_{0.8}Lu_{0.2}B_{12}$  при температуре 6.5 К в полярных координатах  $\Delta \rho / \rho(\varphi, H)$ 

Результаты анализа данных рис. 2, 3 для x == 0.8 представлены на рис. 5 и позволяют провести сравнение величины  $\mu_{\rm eff}$  для различных составов  $Ho_x Lu_{1-x} B_{12}$  (на рис. 5а, b по данным [7] показаны также зависимости  $\mu_{\text{eff}}(T)$  и  $\mu_{\text{eff}}(x)$  для составов с x < 0.5). Как следует из рис. 5a, b, с ростом концентрации x магнитных ионов  $Ho^{3+}$  в твердых растворах замещения  $Ho_x Lu_{1-x} B_{12}$ , а также с понижением температуры происходит уменьшение значений  $\mu_{\text{eff}}(x)$  и  $\mu_{\text{eff}}(T)$  магнитных кластеров, что, повидимому, отвечает компенсации момента этих AFобластей ближнего порядка при увеличении их размера и уменьшении влияния температурных флуктуаций. Кроме того, для исследуемого состава с x = 0.8нами впервые установлено, что при понижении температуры в интервале  $T \leq 10\,\mathrm{K}$ значительно растет дрейфовая подвижность носителей заряда, следуя степенной зависимости вида  $\mu_{\rm D}(T) \sim T^{-\alpha}$ , где  $\alpha = 0.38$  (см. рис. 5с).

Полученные в работе результаты (см. рис. 2, 3) позволяют также определить угловую зависимость параметра  $\mu_{\rm D}$ , характеризующего анизотропный

положительный вклад в магнитосопротивление в кристаллах  $Ho_{0.8}Lu_{0.2}B_{12}$  (рис. 5d). Как следует из рис. 5d, отношение коэффициентов  $\mu_D([001])/\mu_D([111]) \sim 2.7$  положительного квадратичного по полю вклада для направлений  $H\|[001]$  и  $H\|[111]$ , определяющее величину эффекта анизотропии магнитосопротивления в  $Ho_{0.8}Lu_{0.2}B_{12}$ , в пределах экспериментальной погрешности сохраняется постоянным при понижении температуры в интервале 2–10 К и соответствует значениям, полученным нами для  $LuB_{12}$  (см. рис. 3c).

При обсуждении природы значительного роста амплитуды положительного магнитосопротивления вблизи  $\mathbf{H} \parallel [001]$ , вслед за авторами [11] можно предположить, что в направлении тока  $\mathbf{I} \parallel [110]$ для  $\mathbf{H} \parallel [001]$  в некомпенсированных металлах RB<sub>12</sub> имеются открытые электронные траектории на поверхности Ферми этих соединений. Однако результаты измерений анизотропии магнитосопротивления в LuB<sub>12</sub> при промежуточных температурах (см., например, на рис. 3b кривую для  $T_0 = 40$  K) приводят к выводу, что подобная форма кривой



Рис. 5. (Цветной онлайн) Температурные (a) и концентрационные (b) зависимости эффективного магнитного момента  $\mu_{\text{eff}}$  (см. текст) AF-кластеров Ho<sup>3+</sup> в твердых растворах замещения Ho<sub>x</sub>Lu<sub>1-x</sub>B<sub>12</sub> различных составов x (данные для  $x \leq 0.5$  взяты из [7]). Штрих-пунктирной прямой показано значение эффективного момента  $\mu_{\text{eff}} \approx 10.7 \,\mu_{\text{B}}$  иона Ho<sup>3+</sup>. (c) – Температурная зависимость дрейфовой подвижности носителей заряда  $\mu_{\text{D}}(T)$  в Ho<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> для направления магнитного поля **H**||[001]. (d) – Анизотропия дрейфовой подвижности в Ho<sub>0.8</sub>Lu<sub>0.2</sub>B<sub>12</sub> при температурах 2.1 K и 6.5 K

 $\Delta \rho / \rho(\varphi, H = 80 \, \text{к}\Theta)$  сохраняется в этом немагнитном додекабориде вплоть до температуры перехода в фазу каркасного стекла ( $T^* \sim 60 \, \text{K} \, [12, 13]$ ). В такой ситуации альтернативное объяснение значительного роста сопротивления в магнитном поле **H**||[001] может быть найдено в рамках предложенного в [14] сценария, основанного на развитии ян-теллеровской неустойчивости кластеров B<sub>12</sub>, приводящей в додекаборидах к кооперативному динамическому эффекту Яна–Теллера и формированию динамических страйпов вдоль направления [001]. Однако для окончательного решения данного вопроса требуется проведение дополнительных исследований особенностей зарядового транспорта и намагниченности в разупорядоченной фазе соединений RB<sub>12</sub>.

5. На кристаллах модельного соединения  $Ho_{0.8}Lu_{0.2}B_{12}$  с большим отрицательным магнитосопротивлением, наблюдающимся вблизи магнитного фазового перехода, выполнено исследование зарядового транспорта. Показано, что доминирующий для направлений  $H \parallel [110]$  и  $H \parallel [111]$  отрицательный вклад оказывается изотропным и масштабируется в координатах  $\rho = f(\mu_{eff}^2 H^2/T^2)$ , что соответствует рассеянию носителей на AF-кластерах ионов  $Ho^{3+}$  (области ближнего AF-порядка) в парамагнитной фазе додекаборида. Обнаружено, что анизотропия магнитосопротивления связана с положительным вкладом, который принимает максимальные значения вдоль  $\mathbf{H} \| [001]$  и может быть обусловлен рассеянием носителей заряда на филаментарной структуре (динамические страйпы), найденной ранее в LuB<sub>12</sub>.

Работа выполнена в рамках проекта РН<br/>Ф $\#\,17\text{-}\,12\text{-}01426.$ 

- 1. G.A. Prinz, Science 282, 1660 (1998).
- S. Jin, T. H. Tiefel, M. McCormack, R. A. Fastnacht, R. Ramesh, and L. H. Chen, Science 264, 413 (1994).
- E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, Phys. Rep. 344, 1 (2001).
- G. Briceno, H. Chang, X. Sun, P.G. Shultz, and X.D. Xiang, Science 270, 273 (1995).
- K.-I. Kobayashi, T. Kimura, H. Sawada, K. Terakura, and Y. Tokura, Nature (London) **395**, 677 (1998).
- S. Sullow, I. Prasad, S. Bogdanovich, M.C. Aronson, J.L. Sarrao, and Z. Fisk, J. Appl. Phys. 87, 5591 (2000).
- N.E. Sluchanko, A.L. Khoroshilov, M.A. Anisimov, A.N. Azarevich, A.V. Bogach, V.V. Glushkov, S.V. Demishev, N.A. Samarin, N.Yu. Shitsevalova, V.B. Filippov, A.V. Levchenko, G. Pristas, S. Gabani, and K. Flachbart, Phys. Rev. B **91**, 235104 (2015).

- I. I. Lobanova, V.V. Glushkov, N.E. Sluchanko, and S.V. Demishev, Scientific Reports 6, 22101 (2016).
- H. Werheit, V. Filipov, K. Shirai, H. Dekura, N. Shitsevalova, U. Schwarz, and M. Armbruster, J. Phys.: Condens. Matter 23, 065403 (2011).
- A.L. Khoroshilov, A.N. Azarevich, A.V. Bogach, V.V. Glushkov, S.V. Demishev, V.N. Krasnorussky, V.V. Voronov, N.Yu. Shitsevalova, V.B. Filippov, S. Gabani, K. Flachbart, and N.E. Sluchanko, J. Low Temp. Phys. 185, 522 (2016).
- M. Heinecke, K. Winzer, J. Noffke, H. Kranefeld, H. Grieb, K. Flachbart, and Yu. B. Paderno, Z. Phys. B 98, 231 (1995).
- N.E. Sluchanko, A.N. Azarevich, A.V. Bogach, I.I. Vlasov, V.V. Glushkov, S.V. Demishev, A.A. Maksimov, I.I. Tartakovskii, E.V. Filatov, K. Flachbart, S. Gabáni, V.B. Filippov, N.Yu. Shitsevalova, and V.V. Moshchalkov, JETP 113, 468 (2011).
- Н.Б. Болотина, И.А. Верин, Н.Ю. Шицевалова, В.Б. Филиппов, Н.Е. Случанко, Кристаллография 61, 208 (2016).
- N. Sluchanko, A. Bogach, N. Bolotina, V. Glushkov, S. Demishev, A. Dudka, V. Krasnorussky, O. Khrykina, K. Krasikov, V. Mironov, V. Filipov, and N. Shitsevalova, cond-mat, arXiv:1707.06516