

МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ И МАГНИТНОЕ УПОРЯДОЧЕНИЕ В ГЕКСАБОРИДАХ ПРАЗЕОДИМА И НЕОДИМА

М. А. Анисимов^{a,b}, А. В. Богач^b, В. В. Глушков^{a,b}, С. В. Демидов^b, Н. А. Самарин^b,
В. Б. Филипов^c, Н. Ю. Шицевалова^c, А. В. Кузнецов^{b,d}, Н. Е. Случанко^{b*}

^a Московский физико-технический институт
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия

^b Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия

^c Институт проблем материаловедения Национальной академии наук Украины
03680, Киев, Украина

^d Московский инженерно-физический институт
115409, Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 мая 2009 г.

Измерено магнитосопротивление $\Delta\rho/\rho$ монокристаллических образцов гексаборидов празеодима (PrB_6) и неодима (NdB_6) в диапазоне температур 2–20 К и в магнитных полях до 80 кЭ. Полученные данные позволяют обнаружить смену режимов с переходом от малого отрицательного магнитосопротивления (ОМС) в парамагнитном состоянии к большому положительному магниторезистивному эффекту в магнитоупорядоченных фазах PrB_6 и NdB_6 . Анализ зависимостей $\Delta\rho(H)/\rho$ позволяет выделить три вклада в магнитосопротивление для исследуемых соединений. Наряду с основным отрицательным квадратичным по магнитному полю вкладом ($-\Delta\rho/\rho \propto H^2$) в парамагнитной фазе также обнаружены линейный положительный ($\Delta\rho/\rho \propto H$) и нелинейный ферромагнитный вклады. С переходом в магнитоупорядоченное состояние линейная положительная компонента в магнитосопротивлении соединений PrB_6 и NdB_6 становится доминирующей, тогда как квадратичный ОМС-вклад полностью подавляется в соразмерной магнитной фазе исследуемых соединений. Наличие нескольких компонент в магнитосопротивлении находит объяснение в предположении о формировании в антиферромагнитных фазах PrB_6 и NdB_6 ферромагнитных нанодоменов (ферронов) в $5d$ -полосе в окрестности редкоземельных ионов. Происхождение квадратичного ОМС-вклада интерпретируется в рамках модели Иосиды, учитывающей рассеяние электронов проводимости на локализованных магнитных моментах РЗ-ионов. В рамках используемого подхода выполнена оценка локальной магнитной восприимчивости χ_{loc} . Показано, что в диапазоне температур $T_N < T < 20$ К поведение χ_{loc} для исследуемых соединений с хорошей точностью может быть описано кюри-вейссовской зависимостью $\chi_{loc} \propto (T - \Theta_p)^{-1}$.

PACS: 72.15.Gd, 72.15.Qm

1. ВВЕДЕНИЕ

Среди перспективных модельных объектов в физике систем с сильными электронными корреляциями (strongly correlated electron systems) выделяются гексабориды RB_6 на основе редкоземельных (РЗ) элементов. Интерес к этим соединениям свя-

зан главным образом с возникновением целого ряда аномалий физических характеристик и многообразием видов основного состояния в ряду RB_6 . Так, из гексаборидов первой половины РЗ-ряда диамагнитный LaB_6 испытывает переход в сверхпроводящее состояние при $T_C \approx 0.45$ К [1], а соединение с тяжелыми фермионами CeB_6 считается классическим примером концентрированной кондо-системы,

*E-mail: nes@lt.gpi.ru

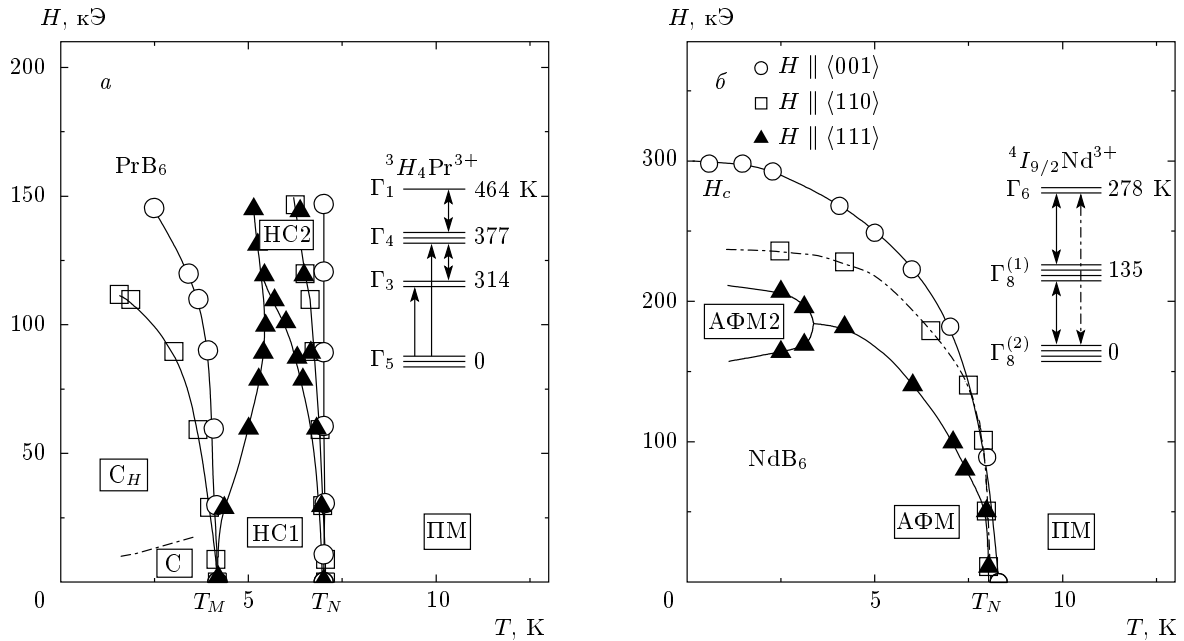


Рис. 1. Магнитные фазовые H - T -диаграммы для PrB_6 [17] (а) и NdB_6 [19, 59] (б) при $\mathbf{H} \parallel \langle 001 \rangle$ (○), $\langle 110 \rangle$ (□), $\langle 111 \rangle$ (▲). На вставках показаны схемы расщепления состояний 3H_4 (Pr^{3+}) и ${}^4I_{9/2}$ (Nd^{3+}) кристаллическим полем. С (C_H) — соразмерная, HC1 (HC2) — несоразмерная, ПМ — парамагнитная, АФМ (АФМ2) — антиферромагнитная фазы, H_c — поле перехода в ПМ-фазу

в которой с понижением температуры происходит переход в фазу с так называемым антиферроквадрупольным (АФК) упорядочением ($T_Q \approx 3.3$ К) и далее, ниже температуры Нееля $T_N \approx 2.3$ К, достигается сложное антиферромагнитное модулированное (АФМ) основное состояние [2–5]. Гексабориды празеодима PrB_6 и неодима NdB_6 также являются антиферромагнитными металлами, в которых магнитные свойства считаются обусловленными локализованными магнитными моментами РЗ-ионов, взаимодействующими между собой через электроны проводимости (РККИ-механизм) [6]. Соединение с переменной валентностью SmB_6 представляет собой узкозонный полупроводник с энергетической щелью $E_g \approx 19$ мэВ в спектре электронных состояний [7, 8], а соединение с колоссальным магнитосопротивлением, гексаборид европия (EuB_6), принято считать полуметаллом, в котором при низких температурах наблюдаются переходы полуметалл–металл и парамагнетик–ферромагнетик [9, 10].

Исследуемые в работе гексабориды празеодима и неодима располагаются в первой половине ряда RB_6 , имеют кристаллическую ОЦК-структуру типа CsCl с атомами редкоземельного элемента в вершинах куба и октаэдром из атомов бора (B_6) в его центре. Кристаллическое электрическое поле (КЭП) кубической симметрии снимает вырождение состояния

3H_4 иона Pr^{3+} (см. схему расщепления на рис. 1а, триплет Γ_5 — основное состояние, полное расщепление 464 К [11]) и состояния ${}^4I_{9/2}$ иона Nd^{3+} (см. схему расщепления на рис. 1б, квартет $\Gamma_8^{(2)}$ — основное состояние, полное расщепление 278 К [11, 12]). При этом, например, для NdB_6 по результатам расчетов [13] магнитная анизотропия, обусловленная КЭП-эффектами, должна приводить к возникновению выделенного направления $\langle 111 \rangle$ и ориентации магнитных моментов ионов R^{3+} в магнитоупорядоченном состоянии вдоль «легкой» оси в отличие от реально наблюдаемого в эксперименте расположения $\mathbf{m} \parallel \langle 001 \rangle$ [14].

Магнитные фазовые H - T -диаграммы соединений PrB_6 и NdB_6 существенно различаются (рис. 1), причем для PrB_6 , как и в случае CeB_6 , в отсутствие внешнего магнитного поля регистрируются два магнитных перехода. В то же время, в отличие от CeB_6 , с ростом температуры в PrB_6 при $T_M \approx 4.2$ К [15, 16] происходит переход из антиферромагнитной соразмерной (С) в несоразмерную (HC1) фазу (рис. 1а). При этом для направления $\mathbf{H} \parallel \langle 111 \rangle$ в PrB_6 , так же как и в CeB_6 , наблюдается положительный наклон границы $T_M(H)$ фазовой диаграммы [17]. Кроме того, близкими по магнитной структуре оказываются соразмерные

фазы в CeB_6 (неколлинеарная $2\mathbf{k} - \mathbf{k}'$ -фаза АФМ, $\mathbf{k}_{1,2} = (1/4; \pm 1/4; 1/2)$ и $\mathbf{k}'_{1,2} = (1/4; \pm \bar{1}/4; 1/2)$ [2–5]) и PrB_6 (неколлинеарная $2\mathbf{k}$ -фаза С на рис. 1а, $\mathbf{k}_{1,2} = (1/4; \pm 1/4; 1/2)$ [15, 16]). При изменении заполнения внутренней $4f$ -оболочки от PrB_6 ($4f^2(\text{Pr}^{3+})$) к NdB_6 ($4f^3(\text{Nd}^{3+})$) происходит подавление промежуточной магнитной фазы (см. рис. 1б). В результате для NdB_6 при $H < 150$ кЭ наблюдается один магнитный переход при $T_N \approx 8$ К в АФМ-фазу с соразмерной коллинеарной магнитной структурой [14], которая может быть получена из неколлинеарной $2\mathbf{k}$ -структуры С-фазы PrB_6 изменением на $\pi/2$ фазового сдвига между двумя фурье-компонентами [15, 16]. Дополнительно следует отметить сходство между магнитными структурами PrB_6 и NdB_6 для направления внешнего магнитного поля $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$ [14–19]: при $H > 20$ кЭ для PrB_6 также наблюдается простая (single- \mathbf{k}) коллинеарная магнитная структура (см. рис. 1а, фаза S_H).

Учитывая орбитальное вырождение основного $4f$ -состояния гексаборидов CeB_6 (Γ_8 -квартет [2–5]), PrB_6 (Γ_5 -триплет [11], вставка на рис. 1а) и NdB_6 (Γ_8 -квартет [11, 12], вставка на рис. 1б), принято считать, что мультипольные взаимодействия играют заметную роль в формировании сложной структуры магнитоупорядоченных фаз в этих соединениях [2–5, 13–23]. В то же время результаты исследований магнитной дифракции в GdB_6 [24, 25], позволили установить аналогичную отмеченной выше неколлинеарную магнитную структуру с вектором $\mathbf{k} = (1/4; 1/4; 1/2)$ и в этом соединении, для которого $4f$ -орбитальное вырождение отсутствует ($^8S_{7/2}$ -состояние РЗ-иона). В такой ситуации возникновение общего для антиферромагнетиков RB_6 «мотива» в магнитной структуре, по мнению авторов работ [26, 27], следует связать с особенностями строения поверхности Ферми, которая достаточно слабо меняется в ряду трехвалентных РЗ-гексаборидов. В частности, для GdB_6 в приближении сильной связи было показано [27], что электрон-электронное взаимодействие приводит к возникновению максимума динамической восприимчивости $\chi(q)$ в окрестности $q = (1/4; 1/4; 1/2)$ в зоне Бриллюэна, который отвечает поляризации $2p$ - и $5d$ -состояний зоны проводимости. Обусловленное максимумом зависимости $\chi(q)$ взаимодействие благоприятствует магнитному упорядочению вблизи $q = (1/4; 1/4; 1/2)$, причем вследствие асимметричного характера особенности $\chi(q)$, по мнению авторов работы [27], объяснение получает также несоразмерный тип магнитной структуры PrB_6 .

Как видно из приведенного выше краткого анализа состояния исследований редкоземельных гексаборидов, вплоть до настоящего времени вопрос о механизмах, ответственных за формирование сложного антиферромагнитного основного состояния в соединениях RB_6 , остается открытым. При этом, наряду с обсуждавшимися выше квадрупольным и анизотропным РККИ-взаимодействиями, авторы работ [16, 23] подчеркивают важную роль эффектов гибридизации между $4f$ -состояниями и зонными состояниями в возникновении значительной анизотропии обменных взаимодействий и стабилизации сложных неколлинеарных магнитных структур в гексаборидах CeB_6 и PrB_6 . Кроме того, для соединения CeB_6 , очевидно, одним из доминирующих факторов являются корреляционные эффекты, приводящие к быстрым локальным спиновым $4f$ - $5d$ -флуктуациям, возникновению магнитной поляризации (спин-поляронные состояния) в $5d$ -полосе зоны проводимости и их участию в формировании сложной магнитной структуры в гексабориде церия [28, 29]. По-видимому, влияние корреляционных эффектов следует принимать во внимание и для гексаборидов PrB_6 и NdB_6 , располагающихся в ряду RB_6 между соединениями CeB_6 с быстрыми спиновыми флуктуациями и SmB_6 с быстрыми зарядовыми флуктуациями. При этом одним из наиболее эффективных экспериментальных методов исследования характера магнитных взаимодействий и особенностей фазовых диаграмм в гексаборидах PrB_6 и NdB_6 с металлической проводимостью представляются измерения гальваномагнитных характеристик в широком диапазоне магнитных полей и при низких температурах, отвечающих парамагнитной и магнитоупорядоченным фазам указанных магнетиков.

В связи с этим представляет интерес изучить роль обменных взаимодействий различной природы, а также влияние корреляционных эффектов на транспортные свойства соединений PrB_6 и NdB_6 и сопоставить полученные данные с известными результатами измерений зарядового транспорта и магнитных свойств гексаборида церия [28, 29]. С этой целью в работе выполнено детальное исследование магнитосопротивления $\Delta\rho(H)/\rho$ в диапазоне температур 2–20 К и в сильных магнитных полях до 80 кЭ на монокристаллических образцах PrB_6 и NdB_6 высокого качества. Для облегчения анализа результатов в настоящей работе мы ограничились измерениями поперечного магниторезистивного эффекта в случае $\mathbf{H} \parallel \langle 001 \rangle$, отвечающем наиболее простому виду фазовых H - T -диаграмм исследуемых гексабо-

ридов (см. рис. 1). Для сопоставления в рамках модели Йосиды полученных в работе результатов для локальной и объемной восприимчивостей нами выполнены также измерения намагниченности PrB_6 и NdB_6 в слабых магнитных полях $\mathbf{H} \parallel \langle 001 \rangle$ в области линейности зависимости $M(H)$ в интервале температур 4.2–300 К.

Ниже изложение оригинальных результатов организовано следующим образом. В разд. 2 описываются методика синтеза образцов и особенности измерений магнитосопротивления и намагниченности. Экспериментальные результаты исследований удельного сопротивления и магнитосопротивления в парамагнитной и магнитоупорядоченных фазах соединений PrB_6 и NdB_6 представлены в разд. 3. В разд. 4 приводится анализ результатов с разделением вкладов в магнитосопротивление, и в Заключение представлены основные выводы.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Для гальваномагнитных измерений использовались монокристаллические образцы высокого качества, выращенные методом вертикального бестигельного индукционного зонного плавления с однократным (NdB_6) и двукратным (PrB_6) переплавом в атмосфере аргона на установке, подробно описанной в работе [30]. Контроль качества образцов осуществлялся при помощи рентгеноструктурного и оптического спектрального анализа.

Измерения поперечного магнитосопротивления в температурном интервале 2–20 К и в магнитных полях до 80 кЭ проводились на установке для гальваномагнитных измерений, аналогичной использованной ранее [31], при направлении измерительного тока $\mathbf{I} \parallel \langle 110 \rangle$. Намагниченность в слабых полях измерялась СКВИД-магнитометром оригинальной конструкции (см., например, работу [28]). Высокая точность стабилизации температуры измерительной ячейки с образцом ($\Delta T \approx 0.01\text{--}0.02$ К), необходимая для выполнения численного дифференцирования экспериментальных кривых $\Delta\rho(H, T_0)/\rho$, достигалась применением температурного контроллера оригинальной конструкции на цифровых сигнальных процессорах (модель CRYOTEL 1,5/300) в схеме с эталонным термометром сопротивления модели CERNOX 1050 компании LakeShore Cryotronics.

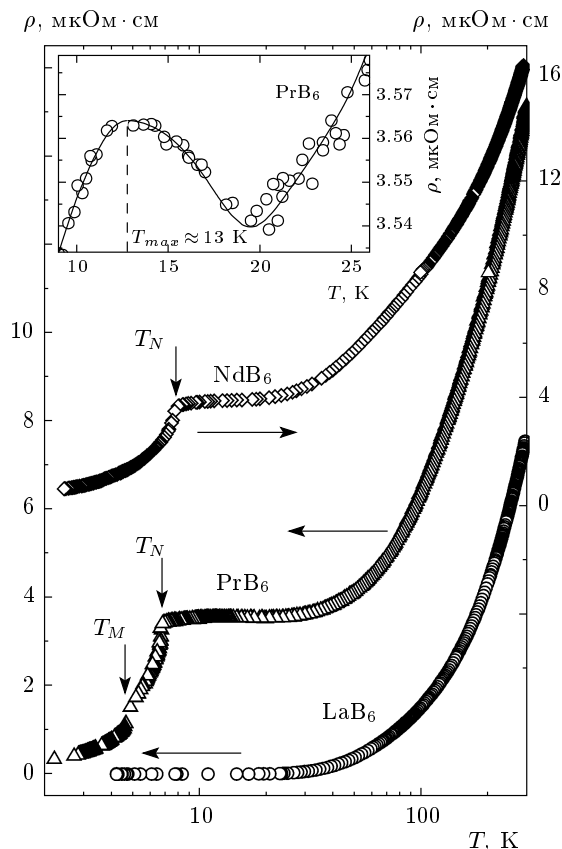


Рис. 2. Температурные зависимости удельного сопротивления гексаборидов LaB_6 , PrB_6 и NdB_6 в отсутствие внешнего магнитного поля. На вставке в увеличенном масштабе показан участок температурной зависимости удельного сопротивления PrB_6 в окрестности низкотемпературного максимума

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

3.1. Удельное сопротивление RB_6 ($\text{R} = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$)

Температурные зависимости удельного сопротивления ρ образцов магнитных гексаборидов PrB_6 и NdB_6 и диамагнитного реперного соединения LaB_6 представлены на рис. 2. Кривые $\rho(T)$ в интервале 10–300 К демонстрируют схожее поведение, типичное для систем с металлической проводимостью. С уменьшением температуры ниже 30 К для соединений RB_6 ($\text{R} = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$) наблюдается переход к режиму примесного рассеяния (рис. 2), причем значения остаточного сопротивления $\rho_0(\text{LaB}_6) \approx 0.01$ мкОм·см, $\rho_0(\text{PrB}_6) \approx 3.5$ мкОм·см и $\rho_0(\text{NdB}_6) \approx 3.9$ мкОм·см хорошо согласуются с результатами работ [6, 32, 33]. Следует отметить также возникновение на кривой

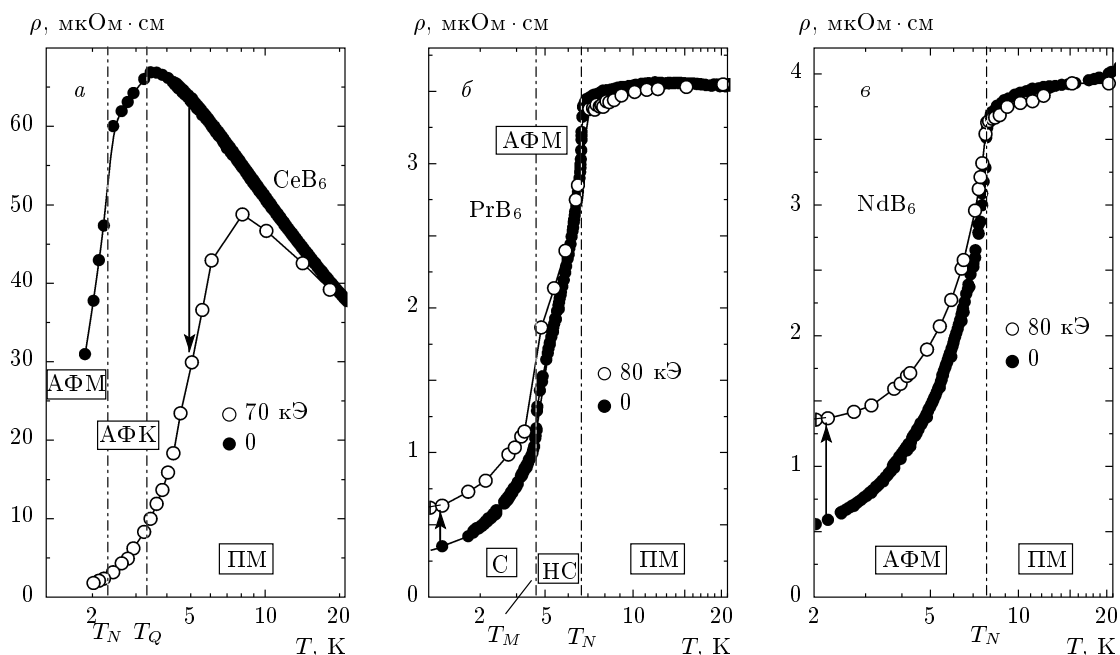


Рис. 3. Температурные зависимости удельного сопротивления гексаборидов CeB_6 (а), PrB_6 (б) и NdB_6 (в) в области температур 2–20 К при $H = 0$ и в сильном магнитном поле. Данные для CeB_6 взяты из работы [28]. Штрихпунктирными линиями отмечены температуры магнитных переходов $T_N(\text{PrB}_6) \approx 6.7$ К, $T_M(\text{PrB}_6) \approx 4.6$ К и $T_N(\text{NdB}_6) \approx 7.7$ К

$\rho(T)$ для PrB_6 низкотемпературного максимума малой амплитуды вблизи $T_{max} \approx 13$ К (см. вставку к рис. 2) в интервале температур, отвечающем парамагнитному состоянию гексаборида празеодима. Переход в антиферромагнитное состояние в магнитных гексаборидах при температурах Нееля $T_N(\text{PrB}_6) \approx 6.7$ К и $T_N(\text{NdB}_6) \approx 7.7$ К сопровождается резким уменьшением удельного сопротивления (рис. 2). Для гексаборида празеодима вблизи температуры перехода в соразмерную АФМ-фазу при $T_M(\text{PrB}_6) \approx 4.6$ К на зависимости $\rho(T)$ регистрируется дополнительная особенность (на рис. 2 отмечена стрелкой при T_M). Отметим, что найденные нами значения температур магнитного упорядочения согласуются с результатами исследований удельного сопротивления, коэффициента теплопроводности и низкотемпературной теплоемкости [6, 18, 20, 29, 33, 34].

На рис. 3б и 3в для соединений PrB_6 и NdB_6 окрестность магнитных фазовых переходов на кривых $\rho(T)$ показана в увеличенном масштабе в отсутствие внешнего поля и в сильном магнитном поле $H = 80$ кЭ. Для удобства сопоставления результатов на рис. 3а по данным работы [28] представлены также зависимости $\rho(T, H_0)$ для соединения CeB_6 с

сильными электронными корреляциями. Как следует из рис. 3, для CeB_6 на зависимости $\rho(T)$ наблюдается максимум значительной амплитуды, который подавляется внешним магнитным полем, причем эффект ОМС в поле 70 кЭ при гелиевых температурах превышает 90%. Для PrB_6 амплитуда аналогичного максимума (см. вставку на рис. 2) оказывается менее 1%, а эффект ОМС в парамагнитном состоянии не превышает 5% в поле 80 кЭ. Для соединения NdB_6 максимум сопротивления не наблюдается, одновременно регистрируется дальнейшее уменьшение величины эффекта ОМС при $T > T_N$. Кроме того, заполнение $4f$ -орбиталей в ряду CeB_6 – PrB_6 – NdB_6 приводит к появлению вместо ОМС положительного вклада в магнитосопротивление в магнитоупорядоченных фазах PrB_6 ($\Delta\rho/\rho|_{80 \text{ кЭ}} \approx 85\%$, $T = 2$ К) и NdB_6 ($\Delta\rho/\rho|_{80 \text{ кЭ}} \approx 142\%$, $T = 2$ К), рис. 3б, в. Для выяснения причин столь значительных изменений магнитосопротивления в ряду CeB_6 – PrB_6 – NdB_6 в парамагнитной и магнитоупорядоченных фазах нами было выполнено детальное исследование полевых зависимостей магнитосопротивления для PrB_6 и NdB_6 с последующим анализом отрицательного и положительного вкладов в магниторезистивный эффект.

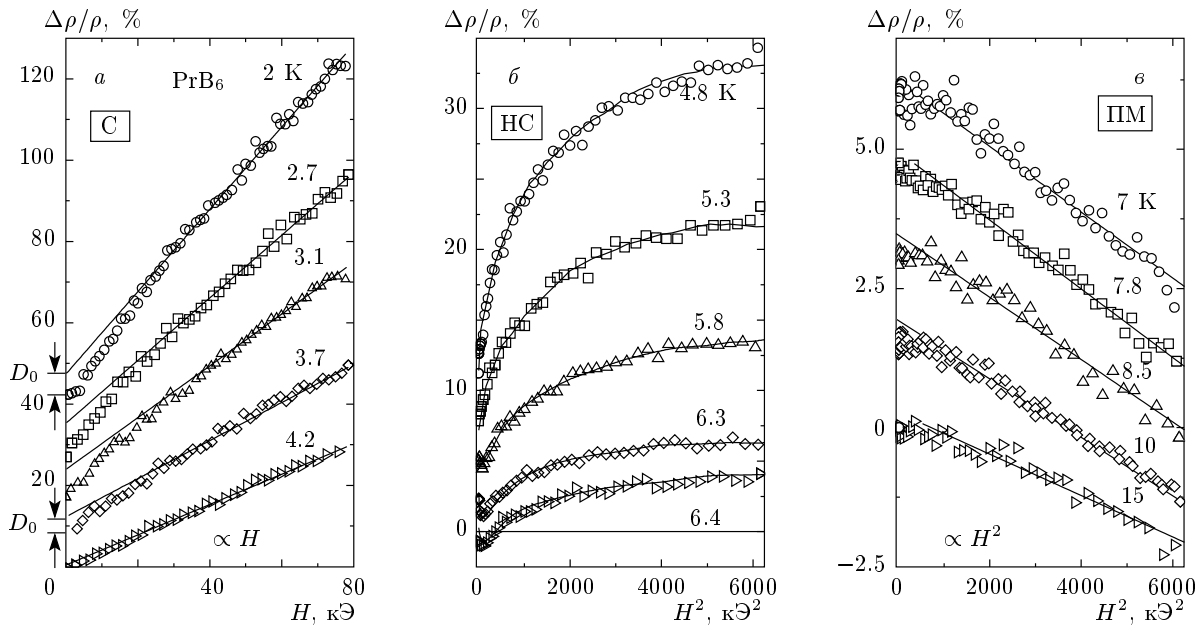


Рис. 4. Полевые зависимости магнитосопротивления PrB_6 в соразмерной АФМ-фазе (а), несоразмерной АФМ-фазе (б) и ПМ-фазах (в) при различных температурах (D_0 — величина насыщения магнитного вклада, см. текст)

3.2. Магнитосопротивление PrB_6

На рис. 4 представлены полевые зависимости магнитосопротивления гексаборида празеодима. Для удобства показаны данные только для одной фазы: АФМ соразмерной (С, рис. 4а; по данным работ [14–18] в направлении $\mathbf{H} \parallel \langle 001 \rangle$ фаза S_H не наблюдается), АФМ несоразмерной (НС, рис. 4б) и парамагнитной (ПМ, рис. 4в). Как следует из данных рис. 4а, полевые зависимости $\Delta\rho/\rho = f(H, T_0)$ соединения PrB_6 характеризуют эффект положительного магнитосопротивления (ПМС) с амплитудой до $\Delta\rho/\rho|_{80 \text{ кЭ}}(\text{PrB}_6) \approx 85\%$ при $T = 2 \text{ К}$, причем при $H > 30 \text{ кЭ}$ доминирующим оказывается линейный вклад вида $\Delta\rho/\rho \approx AH$. С увеличением температуры до $T_M \approx 4.6 \text{ К}$ наблюдается плавное уменьшение амплитуды эффекта ПМС. Вслед за переходом в несоразмерную фазу зависимость $\Delta\rho/\rho = f(H, T_0)$ при $T > T_M \approx 4.6 \text{ К}$ становится нелинейной с насыщением в сильных магнитных полях $H \geq 70 \text{ кЭ}$ (рис. 4б). Отметим также, что в этой области температур наряду с ПМС на кривых $\Delta\rho(H)/\rho$ в малых магнитных полях регистрируется отрицательный минимум малой амплитуды $-\Delta\rho/\rho_{\min} \leq 4\%$. В парамагнитной фазе PrB_6 в используемом диапазоне полей до 80 кЭ наблюдается эффект ОМС сравнительно небольшой (менее 5%) амплитуды (рис. 4в). Пред-

ставленные на рис. 4в данные ОМС в координатах $\Delta\rho/\rho = f(H^2, T_0)$ указывают на преобладание в магнитосопротивлении квадратичной асимптотики вида $\Delta\rho/\rho \approx BH^2$.

3.3. Магнитосопротивление NdB_6

Полевые зависимости магнитосопротивления гексаборида неодима представлены на рис. 5, причем наряду с семейством кривых ПМС (АФМ-фаза, рис. 5а) и ОМС (ПМ-фаза, рис. 5в) на рис. 5б показана также область смены режима магниторезистивного эффекта (интервал от T_N до 9 К в парамагнитной фазе). Как видно из данных рис. 5а, в поведении магнитосопротивления в АФМ-фазе доминирующим является линейный вклад в $\Delta\rho(H)/\rho$ положительного знака. Вблизи T_N происходит смена режимов, которая характеризуется, в частности, появлением максимума на кривых $\Delta\rho(H)/\rho$ в интервале $7.8\text{--}8.2 \text{ К}$ в сильных магнитных полях (рис. 5б). При $T \geq 9 \text{ К}$ во всем диапазоне изменения магнитного поля $H \leq 80 \text{ кЭ}$ регистрируется эффект ОМС, причем в интервале $30\text{--}80 \text{ кЭ}$ преобладающей является отрицательная квадратичная составляющая магнитосопротивления вида $\Delta\rho/\rho \approx BH^2$ (рис. 5в).

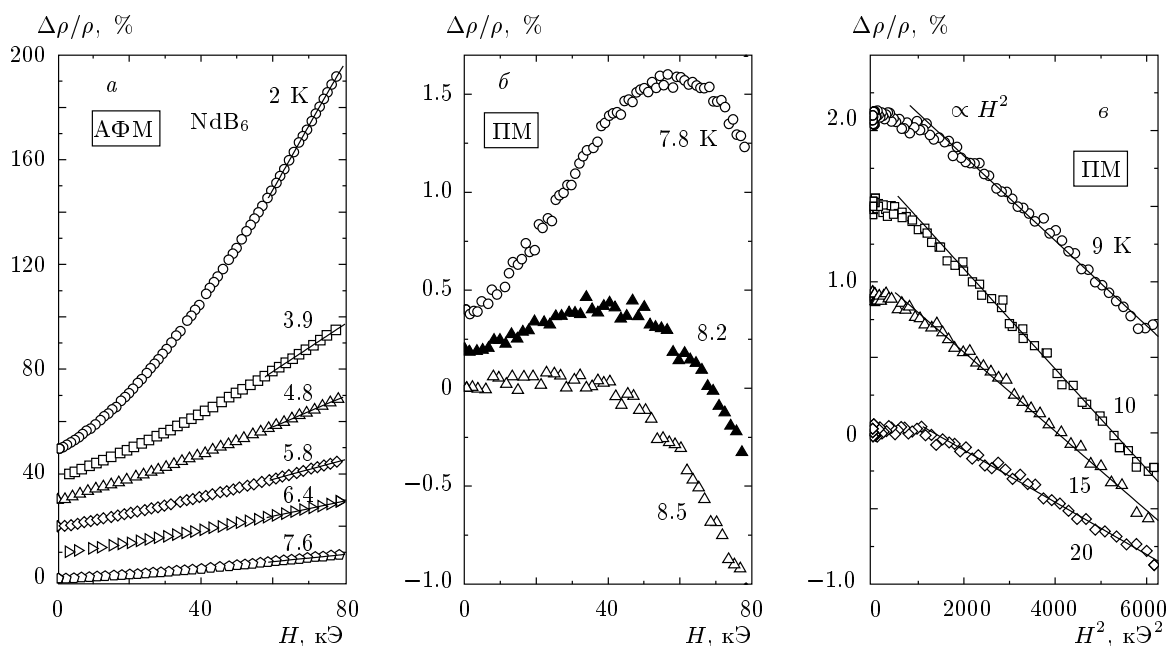


Рис. 5. Полевые зависимости магнитосопротивления NdB_6 в соразмерной АФМ-фазе (а) и ПМ-фазах (б, в) при различных температурах

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Ранее магнитосопротивление гексаборидов PrB_6 и NdB_6 исследовалось авторами работ [6, 18, 21, 33, 35]. Были выполнены [6] измерения угловых зависимостей магнитосопротивления в АФМ-фазе при фиксированной температуре $T_0 = 1.4$ К в магнитном поле до 150 кЭ, и в результате было подтверждено существование открытых орбит и установлена многосвязность поверхностей Ферми этих соединений. Авторами работ [18, 35] проводились измерения продольного магниторезистивного эффекта в PrB_6 и NdB_6 . При этом для NdB_6 был выполнен [35] анализ применимости закона Видемана–Франца в магнитном поле, а для PrB_6 был установлен [18] характер изменения магнитной фазовой H – T -диаграммы под давлением. Наиболее подробно магнитосопротивление PrB_6 и NdB_6 исследовалось соответственно в работах [21] и [33], однако и в этом случае авторы ограничились обсуждением лишь знака $\Delta\rho/\rho$, особенностей его поведения вблизи фазовых переходов в магнитном поле и оценкой подвижности носителей, а не характера зависимостей $\Delta\rho/\rho = f(H)$. Как отмечалось выше, целью настоящей работы явился анализ вкладов в поперечный магниторезистивный эффект, а также выяснение механизмов рассеяния носителей заряда в парамагнитной и магнитоупорядоченной

фазах RB_6 ($R = \text{Pr}, \text{Nd}$) и их связи с магнитной структурой.

4.1. Разделение вкладов в магнитосопротивление RB_6 ($R = \text{Pr}, \text{Nd}$)

Высокая точность экспериментальных данных, полученных при измерениях магнитосопротивления магнетиков RB_6 ($R = \text{Pr}, \text{Nd}$), позволила нам выполнить численное дифференцирование кривых $\Delta\rho(H)/\rho$, измеренных при фиксированных значениях температуры T_0 . На рис. 6 для примера приведены полевые зависимости производной $d(\Delta\rho(H, T_0)/\rho)/dH$ для NdB_6 в ПМ-фазе. Как видно из рис. 6, поведение производных магнитосопротивления в полях $H > 30$ кЭ с хорошей точностью описывается линейной асимптотикой вида $d(\Delta\rho(H)/\rho)/dH \propto A + BH$. Заметим, что выбор интервала линейной аппроксимации кривых $d(\Delta\rho(H, T_0)/\rho)/dH$ определялся нами с учетом минимизации ошибок, возникающих вследствие малого значения регистрируемого сигнала при численном дифференцировании экспериментальной кривой магнитосопротивления в области низких полей.

Анализ полевых зависимостей производных магнитосопротивления позволил выделить три вклада в магнитосопротивление как в парамагнитной, так

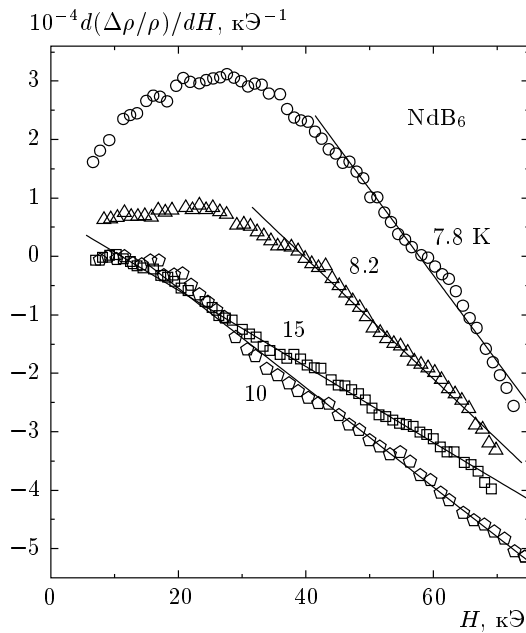


Рис. 6. Полевая зависимость производной магнитосопротивления в парамагнитной фазе NdB_6 при различных температурах. Линиями показан результат аппроксимации производных линейной зависимостью (см. текст)

и в магнитоупорядоченных фазах PrB_6 (рис. 7) и NdB_6 (рис. 8): 1) отрицательный квадратичный ($B(T)H^2$, $B(T) < 0$); 2) положительный линейный ($A(T)H$); 3) знакопеременный нелинейный магнитный ($D(T, H)$). Последний получен вычитанием из экспериментальной кривой $\Delta\rho(H, T_0)/\rho$ суммы вкладов 1 и 2 и, как видно на рис. 7, 8, зависимость $D(T_0, H)$ характеризуется насыщением в магнитных полях 30–50 кЭ. Отметим, что существование нескольких вкладов в магнитосопротивление, очевидно, указывает на сложный характер магнитного рассеяния в PrB_6 и NdB_6 со сменой режима от ОМС к ПМС, возникающей при переходе из ПМ-фазы в АФМ-фазу указанных соединений. При этом из анализа вкладов следует, что в парамагнитном состоянии соединений RB_6 доминирующей оказывается отрицательная квадратичная по магнитному полю компонента магнитосопротивления (см. рис. 7в и 8в), связанная с магнитным рассеянием носителей заряда с переворотом спина на локализованных магнитных моментах РЗ-ионов. Переход в антиферромагнитное состояние сопровождается значительным ростом амплитуды линейного 2 и магнитного 3 вкладов в магнитосопротивление обоих соединений, причем в АФМ-фазе соединений PrB_6 и NdB_6 доми-

нирующей становится линейная положительная компонента магнитосопротивления.

4.2. Амплитуды вкладов в магнитосопротивление RB_6 ($R = \text{Pr}, \text{Nd}$)

Характер изменения с температурой вкладов 1–3 для гексаборидов празеодима и неодима наиболее наглядно представлен на рис. 9, где показаны температурные зависимости параметров D_0 , B , A ($D_0(T)$ — значение насыщения магнитной составляющей $D(H, T)$), характеризующих амплитуды вкладов в магнитосопротивление. Как видно из рис. 9, найденные вклады в магниторезистивный эффект $\Delta\rho/\rho$ имеют особенности вблизи фазовых переходов при T_N и T_M . В частности, для гексаборида празеодима амплитуда магнитного вклада $D_0(T)$ меняет знак в окрестности T_M , и в результате знаки компоненты $D(H, T)$ в соразмерных фазах PrB_6 и NdB_6 оказываются различными (рис. 9а). Кроме того, как для PrB_6 , так и в NdB_6 в антиферромагнитной соразмерной фазе методика разделения вкладов с использованием численного дифференцирования приводит к выводу об отсутствии отрицательного квадратичного по магнитному полю вклада в $\Delta\rho/\rho$, обусловленного рассеянием с переворотом спина носителей заряда на локализованных магнитных моментах (ЛММ) РЗ-ионов. На наш взгляд, обращение в нуль квадратичной ОМС-компоненты $\Delta\rho/\rho \propto B(T)H^2$ при $T = T_M = 4.6$ К в PrB_6 и $T = T_N = 7.7$ К в NdB_6 (рис. 9б) свидетельствует об установлении когерентного состояния ЛММ и зонных электронов в соразмерной фазе этих соединений. При этом возникновение магнитной составляющей в $\Delta\rho/\rho$, насыщающейся в магнитном поле 30–50 кЭ (см. рис. 7, 8), по-видимому, следует отнести к эффектам, связанным с намагничиванием $5d$ -компоненты магнитной структуры в соразмерной фазе RB_6 . Переход в антиферромагнитную несоизмерную фазу PrB_6 при $T > T_M$ приводит к перестройке магнитной структуры [14–16], сопровождающейся изменением характера рассеяния носителей и обуславливающей как появление отрицательной квадратичной компоненты, так и смену знака магнитного вклада $D(H, T_0)$ в магнитосопротивление гексаборида празеодима (см. рис. 7б, 9). Как отмечалось выше, с переходом в парамагнитное состояние доминирующей становится отрицательная квадратичная компонента при сохранении малой линейной ПМС-составляющей магнитосопротивления, в то время как магнитный вклад в $\Delta\rho(H)/\rho$ в этой фазе оказывается пренебрежимо ма-

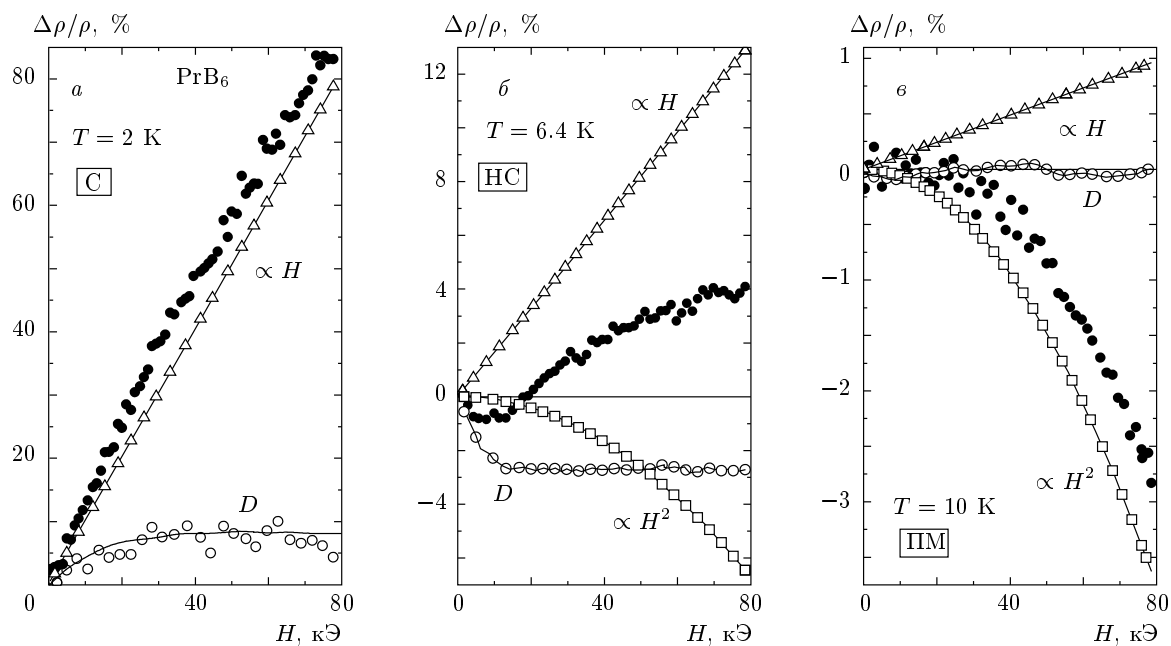


Рис. 7. Разделение вкладов в магнитосопротивление для PrB_6 в фазах С (а), НС (б) и ПМ (в): • — эксперимент; \triangle — линейный; \square — квадратичный; \circ — магнитный с насыщением (см. текст)

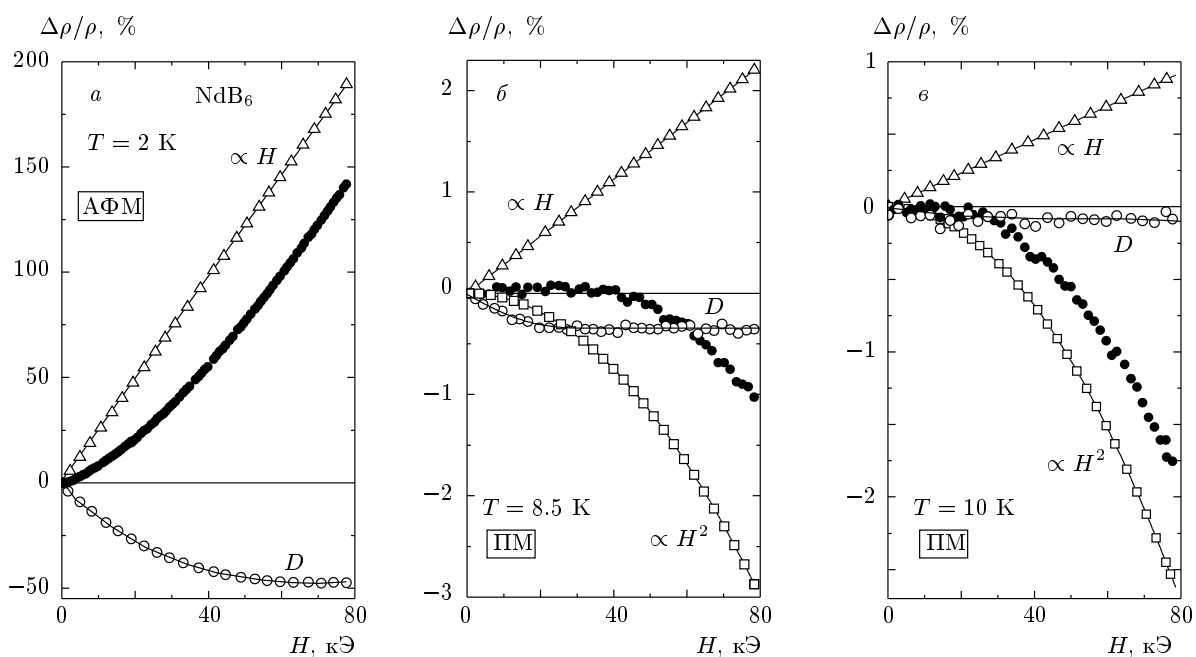


Рис. 8. Разделение вкладов в магнитосопротивление для NdB_6 в фазах АФМ (а) и ПМ (б, в); обозначения такие же, как на рис. 7

лым (см. рис. 7в, 9). Отметим также, что в случае гексаборида неодима в АФМ-фазе для магнитного $D_0(T)$ и линейного $A(T)H$ вкладов в магнитосопротивление наблюдается дополнительная особенность

при температуре вблизи $T^* \approx 4$ К (см. рис. 9а и 9в), которая коррелирует также с аномалиями на кривой теплопроводности [32] и зависимости упругого модуля $C_{44}(T)$ [36].

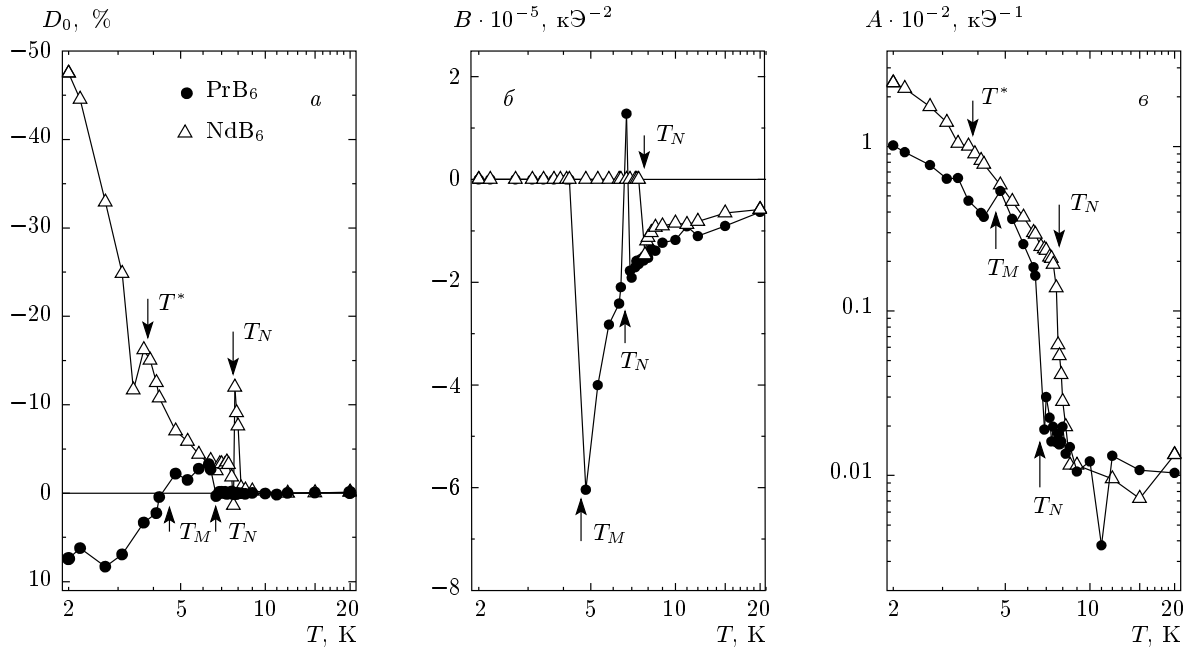


Рис. 9. Температурные зависимости коэффициентов D_0 магнитной составляющей (а), B квадратичной компоненты (б) и A линейного вклада в магнитосопротивление (см. текст) для PrB_6 и NdB_6 . Стрелками у кривых показаны температуры переходов T_M , T_N и $T^* \approx 4$ К (см. текст)

4.3. Магнитосопротивление в парамагнитной фазе RB_6

Для описания отрицательной квадратичной компоненты $\Delta\rho(H)/\rho$ в парамагнитном состоянии соединений PrB_6 и NdB_6 нами использовалась модель Иосиды [37], учитывающая вклад от рассеяния электронов проводимости на ЛММ (s - d -обмен). При этом отрицательное магнитосопротивление оказывается пропорциональным квадрату локальной намагниченности \mathbf{M}_{loc} [37]:

$$-\Delta\rho/\rho \approx 0.61\langle M \rangle^2/S^2 \propto \mathbf{M}_{loc}^2, \quad (1)$$

причем в области малых магнитных полей соотношение (1) упрощается:

$$-\Delta\rho/\rho \propto \chi_{loc}^2 H^2, \quad (2)$$

где χ_{loc} — локальная магнитная восприимчивость, определяемая через производную магнитосопротивления по полю:

$$\chi_{loc}(H, T_0) = \sqrt{-\frac{1}{H} \frac{d(\Delta\rho(H, T_0)/\rho)}{dH}}. \quad (3)$$

Поскольку модель Иосиды описывает только отрицательный квадратичный вклад и не объясняет появления двух других (2, 3) магниторезистивных составляющих, наблюдающихся в парамагнитной фазе соединений с сильными электронными

корреляциями, для интерпретации дополнительных вкладов 2 и 3 в $\Delta\rho(H)/\rho$ авторами работы [38] было предложено объяснение в рамках феноменологической концепции спиновых поляронов. Согласно [38], спин-поляронные состояния формируются в окрестности РЗ-иона вследствие быстрых локальных спиновых $4f$ - $5d$ -флуктуаций в металлической матрице соединений РЗ-элементов и представляют собой области магнитной поляризации электронов проводимости. В результате в выражении (1) к намагниченности локализованных магнитных моментов $4f$ -состояний, \mathbf{M}_{loc} , необходимо добавить вклад областей спиновой поляризации зонных носителей, \mathbf{m}_{loc} :

$$-\Delta\rho/\rho \propto (\mathbf{M}_{loc} + \mathbf{m}_{loc})^2, \quad (4)$$

причем в области малых полей соотношение (4) преобразуется к виду

$$-\Delta\rho/\rho \propto -BT^2/2 + A(T, H)H + D(T, H), \quad (5)$$

представляющему собой сумму трех вкладов. В выражении (5) наряду с отрицательным квадратичным вкладом в магнитосопротивление с амплитудой $-B(T, H) = \chi_{loc}^2$ присутствует также линейная компонента с коэффициентом $A(T, H) = \chi_{loc} m_{loc} \cos \alpha$ (α — угол между \mathbf{M}_{loc} и \mathbf{m}_{loc}) и нелинейная магнитная составляющая $D(T, H) \propto \mathbf{m}_{loc}^2$. Подчеркнем,

что наличие как линейного ($\Delta\rho(H)/\rho \propto AH$), так и нелинейного магнитного ($\Delta\rho/\rho \propto m_{loc}^2$) вкладов в парамагнитной фазе соединений $R\text{V}_6$ ($R = \text{Pr}, \text{Nd}$) связывается авторами работы [38] с формированием в полосе $5d$ -состояний зоны проводимости областей спиновой поляризации (ферронов по терминологии работ [39, 40]). При этом если нелинейный магнитный вклад с насыщением феноменологически описывает процесс намагничивания ферронов, то появление в парамагнитной фазе вблизи T_N линейной компоненты обусловлено эффектами интерференции отрицательного квадратичного вклада 2 и магнитного вклада 3.

Следует отметить, что недостаток информации о взаимном расположении векторов \mathbf{M}_{loc} и \mathbf{m}_{loc} существенно ограничивает возможности количественного анализа в рамках используемой феноменологической концепции. Тем не менее спин-поляронный подход успешно применялся ранее для описания поведения удельного сопротивления и эффекта ОМС в магнетиках с сильными электронными корреляциями CeV_6 [28] и CeAl_2 [31, 38]. При этом в АФМ-фазах CeV_6 и CeAl_2 , как и в парамагнитном состоянии в этих соединениях, вследствие сильных спиновых $4f$ – $5d$ -флуктуаций преобладающим в магнитосопротивлении является ОМС-вклад [28, 31, 38], однако для интерметаллида CeAl_2 как при $T \geq T_N$, так и при $T < T_N$ наблюдается также заметная линейная ПМС-составляющая [38]. Поскольку, в отличие от соединений CeV_6 и CeAl_2 , в магнитоупорядоченных соразмерных фазах PrV_6 и NdV_6 отрицательный квадратичный вклад отсутствует (см. рис. 7а и 8а) и доминирующим является эффект ПМС (см. рис. 3–5), указанный подход (см. соотношения (1)–(5)) может быть непосредственно применен только для объяснения поведения магнитосопротивления в PrV_6 и NdV_6 в интервалах температур соответственно $T > T_M$ и $T > T_N$, т. е. там, где регистрируется эффект ОМС. В то же время наблюдение и в АФМ-фазах магнетиков $R\text{V}_6$ знакопеременного магнитного вклада в $\Delta\rho/\rho$, амплитуда которого насыщается в магнитных полях 30–50 кЭ (см. рис. 7, 8), по-видимому, следует также связать с формированием областей спиновой поляризации в $5d$ -полосе вблизи РЗ-ионов, однако линейная в области малых полей зависимость $D(H, T_0)$ (см. рис. 7, 8), в отличие от квадратичной полевой зависимости величины \mathbf{m}_{loc} , предсказываемой соотношением (4), требует альтернативной, отличающейся от предложенной в работе [38] интерпретации этой магнитной составляющей в магнитоинтерференционном эффекте.

4.4. Локальная магнитная восприимчивость соединений $R\text{V}_6$

Как видно из соотношения (3), квадратичная отрицательная компонента в магнитосопротивлении позволяет оценить поведение локальной магнитной восприимчивости $\chi_{loc}(T)$ в соединениях PrV_6 и NdV_6 . Полученная таким образом зависимость $\chi_{loc}(T)$ подчиняется закону Кюри–Вейсса $\chi_{loc}^{-1} \propto (T - \Theta_p)$ (рис. 10), причем найденные экстраполяцией кривых $\chi_{loc}^{-1}(T)$ в интервале 9–20 К парамагнитные температуры Кюри $\Theta_p(\text{PrV}_6) \approx -27$ К и $\Theta_p^I(\text{NdV}_6) \approx -28$ К с хорошей точностью совпадают с результатами выполненных нами измерений объемной магнитной восприимчивости гексаборидов празеодима и неодима (см. кривые $\chi^{-1}(T)$ на рис. 10, а также работы [21, 41]). Анализируя поведение $\chi_{loc}(T)$, следует отметить также, что в несоизмерной и парамагнитной фазах PrV_6 (интервал 4.6–9 К на рис. 10а) и в парамагнитной фазе NdV_6 вблизи T_N (интервал 7.7–9 К на рис. 10б) с понижением температуры наблюдается резкий рост величины χ_{loc} . Аппроксимация кривых $\chi_{loc}(T)$ в этих интервалах кюри-вейссовской зависимостью приводит к положительным значениям $\Theta_p^{\text{HC}}(\text{PrV}_6) \approx 2.2$ К и $\Theta_p^{\text{HC}}(\text{NdV}_6) \approx 4.3$ К, отвечающим ферромагнитному характеру взаимодействия непосредственно перед переходом в соразмерную фазу в этих соединениях. На наш взгляд, такое поведение локальной восприимчивости является аргументом в пользу возникновения в металлической матрице в $5d$ -полосе в окрестности РЗ-ионов ферромагнитных областей наноразмера, определяющих рост χ_{loc} вблизи T_N в NdV_6 и T_M в PrV_6 , причем с переходом в АФМ-фазу эти области магнитной поляризации участвуют в формировании магнитной структуры ($5d$ -компоненты) в гексаборидах $R\text{V}_6$.

В связи с этим следует отметить также результаты ЯМР-исследований, полученные в работе [42] для PrV_6 и NdV_6 в парамагнитном состоянии. В частности, в этой работе было показано, что скорость релаксации ^{11}B -ЯМР демонстрирует критическое поведение вида $1/T_1 \propto [(T - T_N)/T_N]^{-0.2}$ в интервале температур выше T_N в PrV_6 и NdV_6 . Поскольку параметр $1/T_1$ связан непосредственно с динамической восприимчивостью $\chi(q, \omega_0)$ [42], резкий рост скорости релаксации ЯМР с понижением температуры в парамагнитной фазе вблизи T_N , по-видимому, может быть сопоставлен с обнаруженным нами возращанием $\chi_{loc}(T)$ (см. рис. 10). Отметим, что найденная в работе [42] расходимость параметра $1/T_1$ вблизи T_N интерпретировалась авторами в терми-

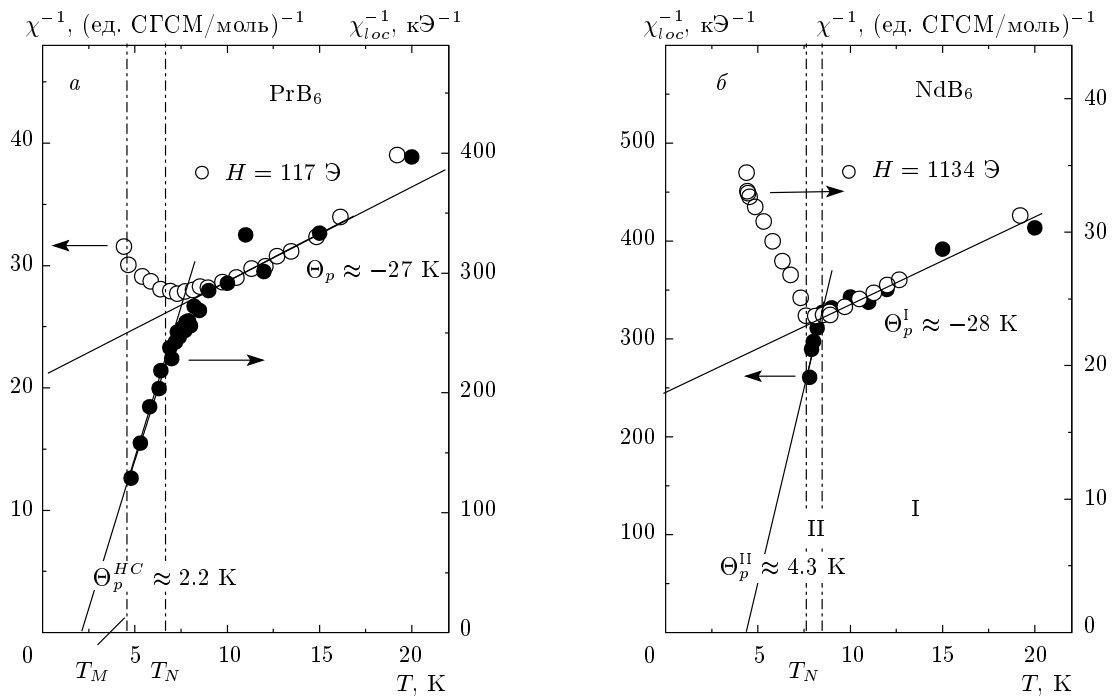


Рис. 10. Температурные зависимости локальной и объемной магнитных восприимчивостей для PrB_6 (а) и NdB_6 (б) в кюри-вейссовских координатах. Показаны также результаты линейной аппроксимации зависимостью $\chi_{loc}^{-1} \propto T - \Theta_p$ (см. текст)

нах возникновения ближнего магнитного порядка при температурах, значительно превышающих температуры Нееля в этих соединениях.

4.5. Положительный линейный и магнитный вклады в магнитосопротивление RB_6

При обсуждении природы положительного магнитосопротивления, наблюдающегося в магнитоупорядоченном состоянии RB_6 ($\text{R} = \text{Pr}, \text{Nd}$), отметим, что возникновение эффекта ПМС заметной амплитуды было обнаружено ранее как в анизотропном ферромагнетике CeRu_2Ge_2 при $T < T_C = 7.5 \text{ K}$ [43], так и в антиферромагнитных металлах CeNi_4Sn и $\text{Ce}_2\text{Ni}_2\text{Sn}$ при $T < T_N$ [44], а также в квазидвумерных сверхпроводниках с тяжелыми фермионами CeCoIn_5 [45] и $\text{Ce}(\text{Ir}, \text{Rh})\text{In}_5$ [46] при $T > T_C$. Следует отметить, что эффект ПМС большой амплитуды наблюдался также в высокотемпературных сверхпроводниках в псевдощелевом состоянии при $T > T_C$ [47] и в органических проводниках с волной спиновой плотности (ВСП) [48, 49]. В то же время наиболее известной трехмерной системой с ВСП-антиферромагнитным основным состоянием является металлический хром (Cr), в кото-

ром при низких температурах в несоизмерной фазе эффект ПМС достигает 180% в магнитном поле $H = 12 \text{ кЭ}$ [50]. Кроме того, согласно результатам исследований [51, 52] амплитуда ПМС в Cr резко убывает при замещении на Fe и Co, причем в системе Cr:Fe при переходе вблизи $x \approx 1.5 \text{ ат. \%}$ Fe в ВСП-фазу с соразмерной магнитной структурой наблюдается смена знака магнитосопротивления (эффект ОМС). Аналогично случаю Cr:Fe, обнаруженное в сплавах Cr:Co резкое подавление эффекта ПМС при $x < 1.5 \text{ ат. \%}$ Co, по мнению авторов работы [52], оказывается обусловленным возрастанием амплитуды спиновых флуктуаций.

В такой ситуации происхождение ПМС в магнитоупорядоченном состоянии исследуемых соединений RB_6 , на наш взгляд, следует связать с особенностями рассеяния носителей заряда на сложной магнитной структуре, сформированной из ЛММ РЗ-ионов (4f-компонента) и ВСП (5d-составляющая). При этом убывание амплитуды спиновых флуктуаций в ряду $\text{CeB}_6\text{-PrB}_6\text{-NdB}_6$, как и в случае сплавов Cr:Fe и Cr:Co [51, 52], приводит к резкому возрастанию величины эффекта ПМС от 85% в PrB_6 (см. рис. 4) до 142% в NdB_6 (см. рис. 5) в магнитоупорядоченной фазе RB_6 (см. также рис. 7, 8).

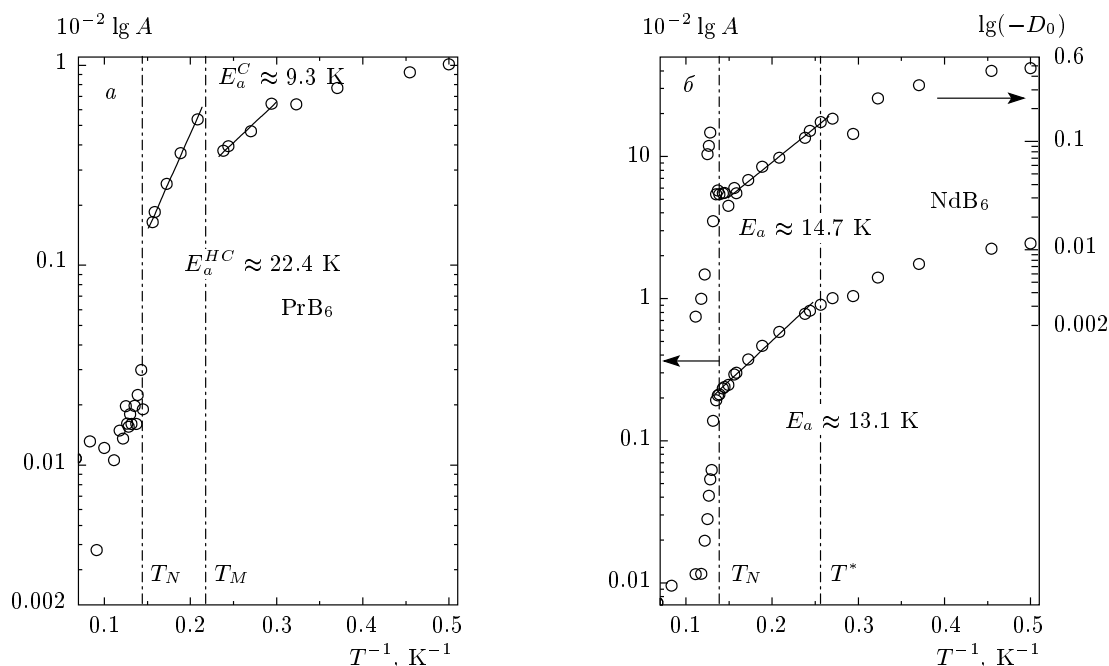


Рис. 11. Температурные зависимости коэффициента A линейного вклада и параметра D_0 магнитной составляющей в магнитосопротивлении в обратных логарифмических координатах для PrB_6 (а) и NdB_6 (б). Прямыми показаны результаты аппроксимации данных активационной зависимостью

В рамках используемого в работе спин-поляронного подхода к описанию зарядового транспорта магнетиков RB_6 , по нашему мнению, наиболее естественным объяснением эффекта ПМС представляется механизм, связанный со стабилизацией и возрастанием амплитуды ВСП во внешнем магнитном поле [48, 53]. Однако, насколько нам известно, в настоящее время отсутствует теоретическое описание зарядового транспорта в магнитном поле в зонных магнетиках с ВСП, что ограничивает возможности количественного анализа эффекта ПМС в гексаборидах PrB_6 и NdB_6 .

В то же время представляет интерес установить вид аналитической зависимости коэффициента $A(T)$ линейного вклада, а также амплитуды магнитной составляющей $D_0(T)$ в АФМ-фазах RB_6 ($R = \text{Pr}, \text{Nd}$). Вид зависимостей $A(T)$ и $D_0(T)$ в обратных логарифмических координатах (рис. 11) позволяет сделать вывод об активационном характере поведения линейной и магнитной компонент в NdB_6 непосредственно вслед за переходом в соразмерную фазу в интервале температур 4–7.7 К с энергиями активации соответственно $E_a = 13.1 \pm 2.0 \text{ K}$ и $E_a = 14.7 \pm 0.5 \text{ K}$. Отметим, что близкое значение $16 \pm 1 \text{ K}$ было получено для величины расщепления Δ четвертого $\Gamma_8^{(2)}$ -состояния в АФМ-фазе

NdB_6 из анализа дисперсионных кривых спектров магнитных возбуждений в предположении изотропного обмена в отсутствие квадрупольных взаимодействий [54]. Для гексаборида празеодима изменение параметра $A(T)$ (рис. 11а) в несоразмерной фазе в интервале 4.6–6.7 К также характеризуется активационным поведением с энергией активации $E_a^{HC} = 22.4 \pm 1.0 \text{ K}$. Переход в соразмерную фазу при $T \approx T_M \approx 4.6 \text{ K}$ сопровождается резким уменьшением $A(T)$ и, далее, переходом в интервале 3–4.6 К к активационной асимптотике с $E_a^C = 9.3 \pm 2.0 \text{ K}$ (рис. 11а). Отметим, что подобный анализ для магнитного вклада $D_0(T)$ в PrB_6 оказывается достаточно грубым, поскольку вблизи T_M параметр $D_0(T)$ меняет знак (см. рис. 9а). В то же время оценка величины E_a^C по зависимости $D_0(T)$ в интервале 3–4.6 К приводит к значению $E_a^C = 10.6 \pm 1.0 \text{ K}$, которое оказывается сопоставимым с найденной в работе [55] величиной расщепления триплетного основного Γ_5 -состояния Pr^{3+} с $\Delta = 1.0 \pm 0.1 \text{ мэВ}$.

Более детальные измерения спектров неупругого рассеяния нейтронов в магнитоупорядоченных фазах PrB_6 были выполнены сравнительно недавно [56]. Анализ спектров магнитных возбуждений в С-, НС- и ПМ-фазах PrB_6 с учетом взаимодействий

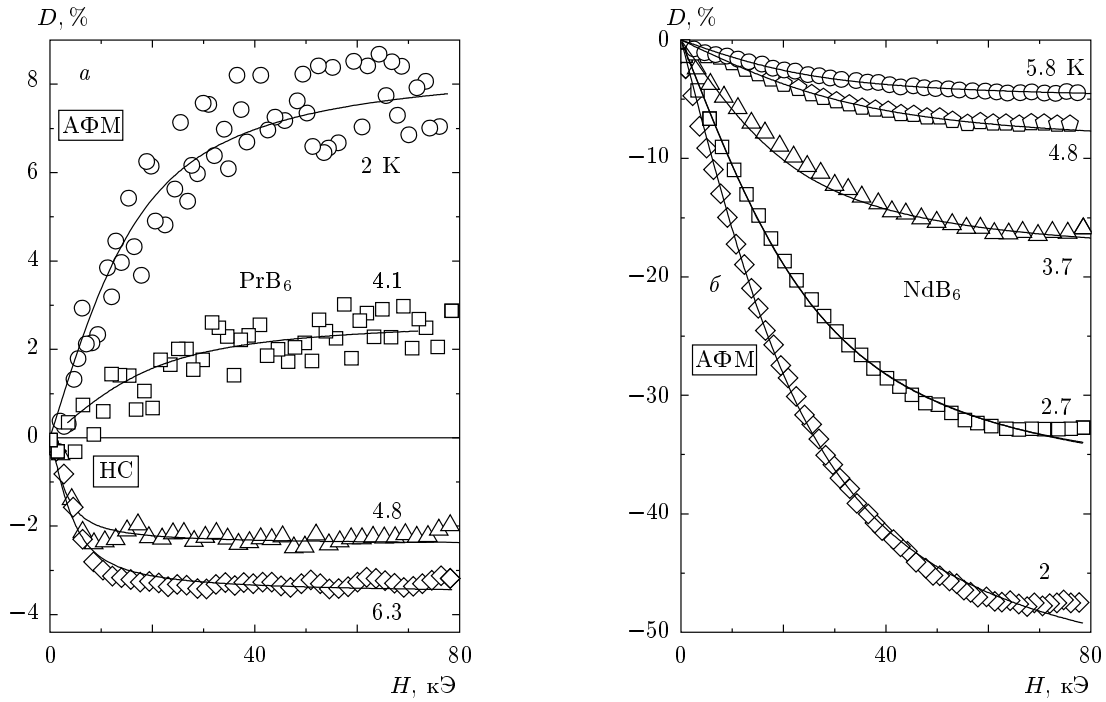


Рис. 12. Полевые зависимости магнитного вклада $D(H, T_0)$ для PrB_6 (а) и NdB_6 (б) при различных температурах. Сплошными линиями показаны результаты аппроксимации полученных данных соотношением (6)

вплоть до четвертых ближайших соседей позволил установить, что величина Δ в соразмерной фазе оказывается равной $\Delta = 1.66 \pm 0.06$ мэВ, тогда как расщепление Γ_5 -триплета молекулярным полем в несоизмерной фазе составляет $\Delta_1 = 1.28 \pm 0.06$ мэВ и $\Delta_2 = 1.79 \pm 0.11$ мэВ [56]. При этом низкочастотный максимум в спектрах магнитных возбуждений для \mathbf{k} в центре магнитной зоны Бриллюэна располагается при энергиях примерно 1 мэВ, что, по-видимому, и определяет величину энергии активации $E_a^C = 10 \pm 2$ К, найденную нами при исследованиях активационных зависимостей вкладов $A(T)$ и $D_0(T)$ в магнитосопротивление PrB_6 в соразмерной фазе. Далее, энергии активации $E_a^{HC} = 22.4 \pm 1.0$ К (рис. 11а), по-видимому, следует сопоставить величину расщепления $\Delta_2 = 1.79 \pm 0.11$ мэВ ≈ 21 К [56].

4.6. Анализ полевых зависимостей магнитного вклада в магнитосопротивление RB_6

Найденные в результате применения процедуры разделения вкладов (см. рис. 7, 8) полевые зависимости $D(H, T_0)$ магнитного вклада с насыщением для соединений RB_6 ($\text{R} = \text{Pr}, \text{Nd}$) анализировались нами при его аппроксимации ланжевеновской зависимостью вида

$$-\Delta\rho(H)/\rho \propto L(\alpha) \equiv \text{cth } \alpha - 1/\alpha, \quad (6)$$

где $\alpha = \mu H/k_B T$ и μ — эффективный магнитный момент ферромагнитных нанокластеров. Результаты аппроксимации экспериментальных кривых $D(H, T_0)$ соотношением (6) представлены на рис. 12. Как видно из данных на рис. 12, используемый подход позволяет с достаточной точностью описать кривые $D(H, T_0)$, которые в силу специфики магнитосопротивления, по-видимому, отвечают вращению вектора намагниченности ферромагнитных нанобластей (кластеров) внешним магнитным полем. Эффективный магнитный момент указанных спин-поляризованных нанобластей в матрице RB_6 оценивался нами в рамках соотношения (6). Результаты выполненных оценок для PrB_6 и NdB_6 представлены на рис. 13. Найденные значения $\mu(T)$ в соразмерных фазах PrB_6 и NdB_6 оказываются меньше магнетона Бора μ_B и, по-видимому, могут быть обусловлены спиновой поляризацией $5d$ -состояний в окрестности РЗ-ионов. В несоизмерной фазе PrB_6 величина $\mu \geq 4\mu_B$ (рис. 13а) оказывается значительно больше как магнитного момента основного Γ_5 -состояния иона Pr^{3+} ($\mu_{\Gamma_5} \approx 2\mu_B$ [21]), так и упорядочивающегося ЛММ Pr^{3+} ($\mu_C \approx 1.2\mu_B$ [16]) и, на наш взгляд, свидетельствует о формировании

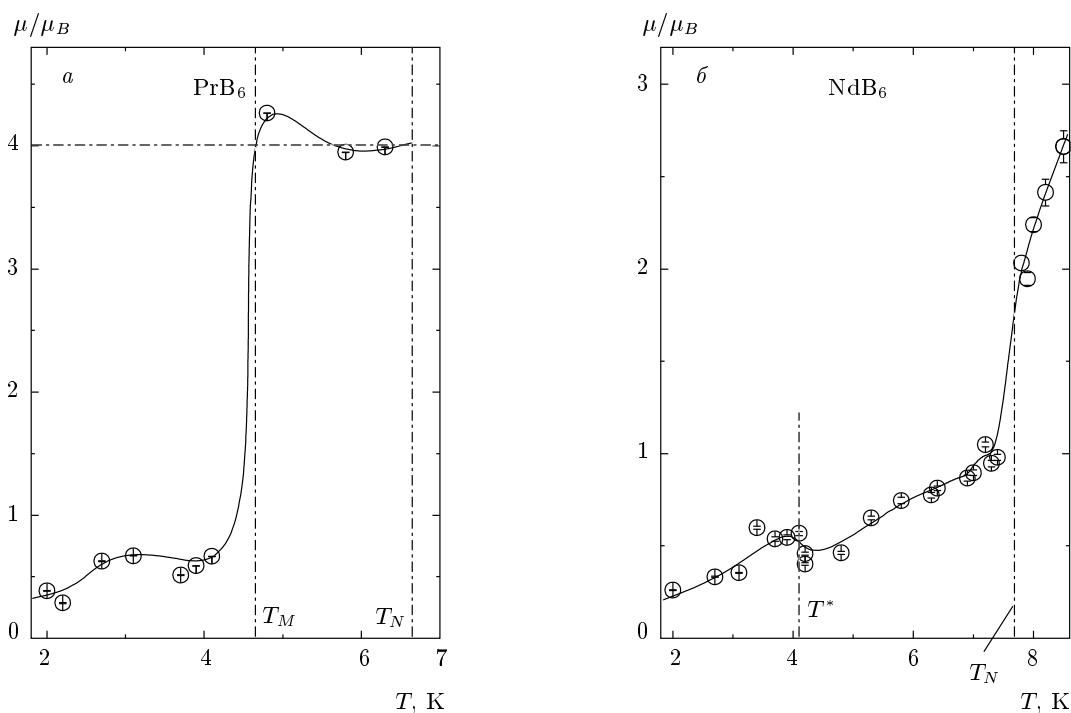


Рис. 13. Температурные зависимости эффективного магнитного момента μ , оцененного из данных рис. 12 в рамках соотношения (6), для PrB_6 (а) и NdB_6 (б)

нии магнитных кластеров, предположительно димеров, включающих в себя ЛММ $4f$ -оболочки Pr^{3+} и спин-поляризованные области $5d$ -состояний. Отметим, что подобное образование магнитных кластеров перед магнитным фазовым переходом наблюдалась ранее при измерениях магнитосопротивления моносилицида железа [57].

Найденные для NdB_6 при $T \geq T_N$ значения $\mu \approx (2-2.7)\mu_B$ (рис. 13б) формально оказываются близкими к расчетным значениям магнитного момента насыщения μ_s в соразмерной фазе, составляющим $2.1\mu_B$, $2.4\mu_B$ и $2.48\mu_B$ на ион неодима соответственно для $\mathbf{H} \parallel \langle 100 \rangle$, $\mathbf{H} \parallel \langle 110 \rangle$ и $\mathbf{H} \parallel \langle 111 \rangle$ [19], а также к величине упорядочивающегося момента в АФМ-состоянии гексаборида неодима $-\mu_C \approx 2\mu_B$ [14]. Однако, как видно из рис. 13б, эта оценка получена нами в интервале температур выше температуры упорядочения, который отвечает режиму сильных ферромагнитных корреляций и формированию ближнего порядка в парамагнитной фазе NdB_6 (см. рис. 10 и работу [42]). Таким образом, указанному значению $\mu \approx (2-2.7)\mu_B$, по-видимому, следует сопоставить образование в каждой элементарной ячейке кристаллической структуры NdB_6 связанной системы

из сонаправленных момента ЛММ Nd^{3+} и феррона в $5d$ -полосе зоны проводимости. С переходом в АФМ-состояние в такой системе, на наш взгляд, должно происходить смещение областей спиновой поляризации $5d$ -состояний, расположенных между соседними ЛММ ионов неодима, для образования простой (single- \mathbf{k} [14]) магнитной структуры. Следует подчеркнуть, что в отличие от CeB_6 и PrB_6 , согласно оценкам [27, 58], в NdB_6 локальные максимумы с близкими значениями параметра обмена $\mathbf{J}(q)$ наблюдаются для волновых векторов $\mathbf{q} = (0, 0, 1/2)$ и $\mathbf{q} = (1/4, 1/4, 1/2)$. Кроме того, следует отметить результаты исследований спектров квантовых осцилляций [59], также свидетельствующие о возникновении в АФМ-фазе NdB_6 новой структуры поверхности Ферми, отличной от хорошо известной для других соединений RB_6 [6, 59]. При этом переход антиферромагнетик-парамагнетик в магнитном поле примерно 300 кЭ по данным работы [59] приводит к восстановлению исходной поверхности Ферми в гексабориде неодима.

4.7. Природа магнитного состояния RB_6

Как было отмечено во Введении, общепринятый подход к объяснению особенностей фор-

мирования магнитного основного состояния в гексаборидах CeB_6 , PrB_6 и NdB_6 основывается на учете, наряду с обменным дипольным, также мультипольных взаимодействий ЛММ РЗ-ионов [2–5, 13–23, 27, 35, 36, 58–67]. Так, опираясь на результаты магнитного рассеяния нейтронов, данных ЯМР- и μSR -экспериментов в CeB_6 , авторы работ [64, 65] пришли к заключению о необходимости учета эффектов взаимодействия в системе дипольных, квадрупольных и октупольных моментов церия при формировании магнитной структуры АФК-фазы. Данные, полученные методом нерезонансной рентгеновской дифракции в АФК-фазе CeB_6 (интервал $T_N \approx 2.3 \text{ К} < T < T_Q \approx 3.3 \text{ К}$ на рис. 3), интерпретировались в работах [66, 67] в терминах возникновения сложной магнитоупорядоченной структуры квадрупольных и гексадекапольных моментов $4f$ -оболочки ионов церия в CeB_6 . В то же время в работах [68–70] было обнаружено анизотропное распределение электронной плотности и связанное с этим возникновение дополнительной (порядка 30 %) спиновой плотности, расположенной вне центров церия как в непосредственной окрестности октаэдров бора, так и внутри кластеров B_6 в матрице гексаборида церия. Авторами работ [69, 70] было установлено, что эти не связанные непосредственно с $^2F_{5/2}$ -состоянием ионов Ce^{3+} области магнитной поляризации наноразмера сохраняются и в парамагнитной фазе при $T_Q < T < 10 \text{ К}$ (область ПМ на рис. 3а), причем направление их поляризации меняется от антипараллельного в парамагнитной фазе CeB_6 к сонаправленному с ЛММ Ce^{3+} в магнитоупорядоченном АФК-состоянии.

Для гексаборидов PrB_6 и NdB_6 одним из ключевых аргументов в пользу определяющего влияния квадрупольных эффектов в формировании соответствующих магнитных структур принято считать данные измерений теплового расширения и магнито-стрикции в этих магнетиках [17, 60, 61]. Однако сравнение результатов, полученных для PrB_6 и NdB_6 , с данными для GdB_6 [71], как и в случае CeB_6 [28, 29], не подтверждает реализации подобного механизма возникновения магнитной анизотропии. В качестве аргумента против определяющей роли квадрупольных взаимодействий следует отметить также, что подобное наблюдаемому для NdB_6 [60] поведение магнито-стрикции и теплового расширения, свидетельствующее о заметной анизотропии и сильной магнитоупругой связи, было зарегистрировано авторами работы [72] для соединения CeAl_2 . Действительно, в CeAl_2 с кубической структурой фазы Лавеса дублетное основное Γ_7 -состояние исключает возмож-

ность возникновения при низких температурах магнитных квадрупольных эффектов. Вслед за авторами работы [23] подчеркнем также, что квадрупольные взаимодействия не могут быть фактором, обуславливающим реализацию фазового перехода первого рода при T_N в соединениях RB_6 , и, таким образом, для объяснения природы магнитоупорядоченного состояния в РЗ-гексаборидах, очевидно, следует искать другие причины.

Один из подходов, предложенный Касуей и Итабаши для интерпретации необычных свойств магнетиков RB_6 [71], основывается на учете динамического эффекта Яна–Теллера в сочетании с формированием при низких температурах димеров на ЛММ РЗ-ионов. Авторами работы [71] было предсказано возникновение, вследствие парных ян-теллеровских искажений, зарядового дипольного упорядочения при T_Q в CeB_6 , T_M в PrB_6 и T_N в NdB_6 (см. рис. 1–3). Однако выполненные прецизионные измерения атомных смещений для CeB_6 при $T \leq 10 \text{ К}$ [73, 74] привели к выводу об отсутствии расщепления либо уширения брегговских пиков как в АФМ-, так и в АФК-фазах гексаборида церия. Полученные в работах [73, 74] данные подтверждают сохранение кубической кристаллической структуры CeB_6 при отсутствии в пределах точности эксперимента ромбоэдрических и тетрагональных искажений и, таким образом, свидетельствуют против предложенной в работе [71] интерпретации.

Подход к объяснению необычной природы магнетизма в CeB_6 сравнительно недавно был предложен авторами работы [75], где в эксперименте по рассеянию поляризованных нейтронов были получены результаты, свидетельствующие о возникновении заметной спиновой поляризации в $5d$ -полосе CeB_6 уже в парамагнитной фазе при $T \leq 7 \text{ К}$. Вслед за этим выполненное комплексное исследование транспортных и магнитных свойств гексаборида церия [28, 29] позволило предложить альтернативное общепринятой интерпретации в терминах магнетизма ЛММ $4f$ -оболочки ионов Ce^{3+} объяснение, основанное на зонном характере антиферромагнитного состояния в интервале температур $T_N \approx 2.3 \text{ К} < T < T_Q \approx 3.3 \text{ К}$ (АФК-фаза на рис. 3а). Авторами работ [28, 29] были сформулированы аргументы в пользу возникновения ВСП в металлической матрице CeB_6 при $T < T_Q$ с последующим переходом при понижении температуры $T < T_N$ в фазу с конкуренцией ВСП и антиферромагнитного упорядочения ЛММ ионов церия. Согласно выводам работ [28, 29], учет взаимодействия пучностей ВСП ($5d$ -компоненты) с ЛММ

4*f*-оболочки ионов церия приводит к формированию магнитных кластеров в металлической матрице CeV₆. При обсуждении необычной магнитной структуры АФМ-фазы CeV₆ следует особо отметить результаты экспериментов по магнитной дифракции нейтронов [76, 77]. В частности, было показано [76, 77], что наряду с основными рефлексами, отвечающими элементарной ячейке магнитной структуры размерами (2*a*, 4*a*, 4*a*) (*a*(CeV₆) ≈ 4.14 Å) в спектрах магнитного рассеяния нейтронов появляется дополнительная интенсивность, которая, по мнению авторов работы [76], может быть связана с ферромагнитной компонентой магнитной структуры CeV₆.

Обращаясь к гексаборидам PrV₆ и NdV₆, отметим, что, поскольку АФМ-фаза CeV₆ и С-фаза PrV₆ имеют близкую магнитную структуру и подобные, близкие по размерам поверхности Ферми [6, 78, 79], представляется естественным ожидать сходного набора магнитных взаимодействий для этих соединений. При этом наряду с РККИ-взаимодействием, задающим общий «мотив» магнитной структуры RV₆ [26, 27], для CeV₆, PrV₆ и NdV₆ необходимо учитывать также взаимодействие ЛММ 4*f*-оболочек РЗ-ионов через локальную спиновую поляризацию 5*d*-состояний зоны проводимости, обусловленную спиновыми 4*f*–5*d*-флуктуациями в направлении соседних РЗ-центров. Именно на существование таких спиновых флуктуаций указывает присутствие квадратичной отрицательной компоненты магнитосопротивления в PrV₆ и NdV₆ (см. рис. 7–10). По-видимому, указанное взаимодействие ЛММ ионов R³⁺ через спин-поляризованные 5*d*-состояния определяет магнитную анизотропию системы и принимает максимальные значения в ряду RV₆ для соединения PrV₆. Действительно, именно для PrV₆ выполненные сравнительно недавно детальные исследования рентгеновского резонансного рассеяния позволили обнаружить возникновение структурных искажений при T_M ≈ 4.5 К при переходе от несоизмерной к соизмерной магнитоупорядоченной фазе [80]. Было найдено, что указанные искажения кубической структуры в PrV₆ не превышают 0.3%, однако по данным работы [80] не представляется возможным установить тип структурных искажений вследствие малой величины эффекта. Кроме того, авторы работы [80] также подчеркивают, что используемая методика резонансной рентгеновской спектроскопии оказывается чувствительной именно к распределению спиновой плотности электронных 5*d*-состояний, которые поляризуются при магнитном упорядочении ЛММ 4*f*-орбиталей и модифици-

руют, таким образом, магнитную структуру соизмерной фазы PrV₆.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Суммируя изложенное выше, отметим прежде всего, что полученные нами результаты исследований магнитосопротивления в парамагнитной и магнитоупорядоченных фазах PrV₆ и NdV₆ свидетельствуют об определяющей роли локальной спиновой поляризации 5*d*-состояний РЗ-ионов при формировании анизотропии магнитных взаимодействий в этих соединениях. При этом анализ магнитной компоненты $D(T_0, H)$ (рис. 13) приводит к выводу об образовании магнитных кластеров наноразмера из ЛММ ионов R³⁺ и 5*d*-ферронов как в парамагнитной фазе RV₆ вблизи T_N, так и в несоизмерной фазе PrV₆. При переходе в соизмерную фазу RV₆ (R = Pr, Nd) обращение в нуль квадратичной ОМС-компоненты (рис. 9*б*), по-видимому, свидетельствует об установлении когерентного режима рассеяния на магнитной структуре, формирующейся с участием ВСП. Таким образом, выполненный нами анализ вкладов $D(T_0, H)$ (рис. 12, 13) и $A(T)$ (рис. 9, 11) в магнитосопротивление позволяет сделать вывод о существенной роли локальной спиновой поляризации электронных 5*d*-состояний не только в зарядовом транспорте, но и в формировании сложной магнитной структуры в RV₆. При этом следует подчеркнуть, что основные различия в магнитной структуре и свойствах магнетиков RV₆, по-видимому, определяются такими факторами, как 1) изменение параметра $\mathbf{J}(q)$ непрямого обмена (РККИ-взаимодействие) при уменьшении постоянной решетки и величины магнитного момента ЛММ РЗ-иона в ряду CeV₆–PrV₆–NdV₆ и 2) варьирование величины нацентового (on-site) 4*f*–5*d*-взаимодействия, обусловленного локальными спиновыми флуктуациями и определяющегося степенью заполнения 4*f*-оболочки РЗ-иона.

Работа выполнена при поддержке Программы Отделения физических наук РАН «Сильнокоррелированные электроны в полупроводниках, металлах, сверхпроводниках и магнитных материалах». Авторы признательны Г. Е. Гречеву за полезные дискуссии, а также К. В. Гонькову и А. В. Духненко за помощь в подготовке и проведении экспериментов.

ЛИТЕРАТУРА

1. P. W. Walch, D. E. Ellis, and F. M. Mueller, *Phys. Rev. B* **15**, 1859 (1977).
2. N. Sato, A. Simiyama, S. Kunii et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 1923 (1985).
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. C. Marcenat, D. Jaccard, D. Sierro et al., *J. Low Temp. Phys.* **78**, 261 (1990).
6. Y. Onuki, A. Umezawa, W. K. Kwok et al., *Phys. Rev. B* **40**, 11195 (1989).
7. N. E. Sluchanko, V. V. Glushkov, B. P. Gorshunov et al., *Phys. Rev. B* **61**, 9906 (2000).
8. C. Cooley, M. C. Aronson, A. Lacerda et al., *Phys. Rev. Lett.* **52**, 7322 (1995).
9. S. Süllow, I. Prasad, M. C. Aroncon et al., *Phys. Rev. B* **57**, 5860 (1998).
10. A. V. Semeno, V. V. Glushkov, A. V. Bogach et al., *Phys. Rev. B* **79**, 014423 (2009).
11. M. Loewenhaupt and M. Prager, *Z. Phys. B* **62**, 195 (1986).
12. G. Pofahl, E. Zirngiebl, S. Blumenroder et al., *Z. Phys. B* **66**, 339 (1987).
13. G. Uimin and W. Brenig, *Phys. Rev. B* **61**, 60 (2000).
14. C. M. McCarthy and C. W. Tompson, *J. Phys. Chem. Sol.* **41**, 1319 (1980).
15. C. M. McCarthy, C. W. Tompson, R. J. Graves et al., *Sol. St. Comm.* **36**, 861 (1980).
16. P. Burlet, J. M. Effantin, J. Rossat-Mignod et al., *J. de Phys. Colloq.* **8**, 459 (1988).
17. M. Sera, M.-S. Kim, H. Tou and, S. Kunii, *J. Phys. Soc. Jpn.* **73**, 3422 (2004).
18. H. Iwakubo, S. Ikeda, Y. Kishino et al., *Phys. Rev. B* **78**, 012409 (2008).
19. S. Awaji, N. Kobayashi, S. Sakatsume et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **68**, 2518 (1999).
20. J. M. Mignot, G. Andre, J. Robert et al., *Phys. Rev. B* **78**, 01415 (2008).
21. S. Kobayashi, M. Sera, M. Hiroi et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **70**, 1721 (2001).
22. O. Sakai, R. Shina, H. Shiba, and P. Thalmeier, *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 3005 (1997).
23. P. Morin, S. Kunii, and T. Kasuya, *J. Magn. Magn. Mat.* **96**, 145 (1991).
24. M. Amara, S. E. Luca, R.-M. Galéra et al., *Phys. Rev. B* **72**, 064447 (2005).
25. K. Kuwahara, R. Yamamoto, M. Kohgi et al., *Physica B* **359–361**, 965 (2005).
26. Y. Kuramoto and K. Kubo, *Physica B* **328**, 135 (2003).
27. Y. Kuramoto and K. Kubo, *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 2633 (2002).
28. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., *ЖЭТФ* **131**, 133 (2007).
29. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., *Письма в ЖЭТФ* **88**, 366 (2008).
30. Н. Ю. Шипевалова, Дисс. . . . канд. физ.-мат. наук, Вроцлав (2001).
31. Н. Е. Случанко, А. В. Богач, В. В. Глушков и др., *ЖЭТФ* **125**, 906 (2004).
32. M. Sera, S. Kobayashi, M. Hiroi et al., *Phys. Rev. B* **54**, R5207 (1996).
33. J. Stankiewicz, S. Nakatsuji, and Z. Fisk, *Phys. Rev. B* **71**, 134426 (2006).
34. M. Reiffers, J. Sebek, E. Santava et al., *J. Magn. Magn. Mat.* **310**, e595 (2007).
35. M. Sera, M. Hiroi, S. Kobayashi, and S. Kunii, *J. Phys. Soc. Jpn.* **67**, 629 (1998).
36. S. Nakamura, T. Goto, S. Kunii et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **63**, 623 (1994).
37. K. Yosida, *Phys. Rev.* **107**, 396 (1957).
38. A. V. Bogach, G. S. Burkhanov, O. D. Chistyakov et al., *Physica B* **378–380**, 769 (2006).
39. Э. Л. Нагаев, *Письма в ЖЭТФ* **6**, 484 (1967).
40. М. Ю. Каган, К. И. Кугель, Д. И. Хомский, *ЖЭТФ* **120**, 470 (2001).
41. H. Hacker, Jr. and M. S. Lin, *Sol. St. Comm.* **6**, 379 (1968).
42. S. Takagi, S. Itabashi, S. Kunii, and T. Kasuya, *J. Magn. Magn. Mat.* **52**, 267 (1985).
43. M. B. Fontes, S. L. Bud'ko, M. A. Continentino, and E. M. Baggio-Saitovitch, *Physica B* **270**, 255 (1999).

44. B. Chevalier, J. G. Soldevilla, J. I. Espeso et al., *Physica B* **259–261**, 44 (1999).
45. N. Nakajima, K. Izawa, Y. Matsuda et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **73**, 5 (2004).
46. N. Nakajima, H. Shishido, H. Nakai et al., *Phys. Rev. B* **77**, 214504 (2008).
47. J. M. Harris, Y. F. Yan, P. Matl et al., *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1391 (1995).
48. T. Sasaki, A. Lebed', T. Fukase, and N. Toyota, *Phys. Rev. B* **54**, 12969 (1996).
49. G. M. Danner, P. M. Chaikin, and S. T. Hannahs, *Phys. Rev. B* **53**, 2727 (1996).
50. S. Arajs and G. R. Dunmyre, *J. Appl. Phys.* **36**, 3555 (1965).
51. S. Arajs, *Phys. St. Sol.* **37**, 329 (1970).
52. S. Arajs, G. R. Dunmyre, and S. J. Dechter, *Phys. Rev.* **154**, 448 (1967).
53. G. Montambaux, *Phys. Rev. B* **38**, 4788 (1988).
54. W. A. C. Erkelens, L. P. Regnault, J. Rossat-Mignod et al., *J. de Phys. Colloq.* **8**, 457 (1988).
55. Е. В. Нефедова, Н. Н. Тиден, К. Сименсмейер и др., *ЖЭТФ* **132**, 19 (2007).
56. M. D. Le, K. A. McEwen, J. G. Park et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 104231 (2008).
57. В. В. Глушков, И. Б. Воскобойников, С. В. Демишев и др., *ЖЭТФ* **154**, 444 (2004).
58. K. Kubo and Y. Kuramoto, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, S2251 (2003).
59. R. G. Goodrich, N. Harrison, and Z. Fisk, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 146404 (2006).
60. M. Sera, S. Itabashi, and S. Kunii, *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 548 (1997).
61. M. Sera, S. Goto, T. Koshikawa et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 014706 (2006).
62. Y. Tanaka, M. Sera, K. Katsumata et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 073702 (2006).
63. S. Tsuji, T. Endo, M. Sera et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **69**, 1974 (2000).
64. R. Shiina, H. Shiba, and P. Thalmeier, *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 1741 (1997).
65. R. Shiina, O. Sakai, H. Shiba, and P. Thalmeier, *J. Phys. Soc. Jpn.* **67**, 3005 (1998).
66. U. Staub, Y. Tanaka, K. Katsumata et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 11007 (2006).
67. Y. Tanaka, U. Staub, K. Katsumata et al., *Europhys. Lett.* **68**, 671 (2004).
68. M. Saitoh, N. Okada, E. Nishibori et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 2369 (2002).
69. A. Schenck, F. N. Gygax, and S. Kunii, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 037201 (2002).
70. A. Schenck, F. N. Gygax, G. Solt et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 257601 (2004).
71. T. Kasuya and S. Itabashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 3864 (1997).
72. E. Fawcett, V. Pluzhnikov, and H. Klimker, *Phys. Rev. B* **43**, 8531 (1991).
73. O. Zacharko, P. Fischer, A. Schenk et al., *Phys. Rev. B* **68**, 214401 (2003).
74. H. Suzuki, Yun Xue, A. Hosomichi et al., *J. Supercond. Nov. Magn.* **19**, 89 (2006).
75. V. Plakhty, L. P. Regnault, A. V. Goltsev et al., *Phys. Rev. B* **71**, R11510 (2005).
76. S. Horn, F. Steglich, M. Loewenhaupt et al., *Z. Phys. B* **42**, 125 (1981).
77. M. Loewenhaupt, J. M. Carpenter, and C. K. Loong, *J. Magn. Magn. Mat.* **52**, 245 (1985).
78. Y. Onuki, T. Komatsubara, P. H. P. Reinders, and M. Springford, *J. Phys. Soc. Jpn.* **58**, 3698 (1989).
79. Y. Onuki, Y. Kurosawa, T. Omi et al., *J. Magn. Magn. Mat.* **76–77**, 37 (1988).
80. H. C. Walker, K. A. McEwen, D. F. McMorrow et al., *Phys. Rev. B* **79**, 054402 (2009).