

ОТКЛИК ЗАРЯДОВОЙ ПОДСИСТЕМЫ НА ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В ДВОЙНЫХ МАНГАНИТАХ $\text{LnBaMn}_2\text{O}_6$

E. B. Мостовщикова^{a}, E. B. Стерхов^b, Я. Я. Пыжъянов^a, С. Г. Титова^b*

^a Институт физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук
620108, Екатеринбург, Россия

^b Институт металлургии Уральского отделения Российской академии наук
620016, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 18 июля 2022 г.,
после переработки 6 сентября 2022 г.
Принята к публикации 8 сентября 2022 г.

Исследованы структурные, магнитные и оптические свойства двойных мanganитов $\text{LnBaMn}_2\text{O}_6$ с $\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x$ ($x = 0.25, 0.5, 0.75$). С помощью анализа температурных зависимостей пропускания в ближнем ИК-диапазоне показано различие отклика зарядовой подсистемы при возникновении зарядового/орбитального упорядочения разного типа. В мanganите $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$ орбитальное упорядочение типа $d_{x^2-y^2}$ приводит к изолирующему состоянию при низких температурах. В мanganитах $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$, $\text{Nd}_{0.75}\text{Sm}_{0.25}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ и $\text{Nd}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ зарядовая подсистема оказывается чувствительна к виду орбитального упорядочения: в температурном интервале, где реализуется попарное выстраивание слоев с $d_{3x^2-r^2}/d_{3y^2-r^2}$ упорядоченными орбиталиами $T_{CO2} < T < T_{CO1}$, наблюдается полупроводниковый характер носителей заряда, а при переходе к послойному выстраиванию орбитально упорядоченных слоев $T < T_{CO2}$ носители заряда имеют металлический характер. В мanganитах $\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ и $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$ отсутствие выраженного металлического характера зарядовой подсистемы при $T < T_{CO2}$ связывается с формированием антиферромагнитного упорядочения СЕ-типа.

Статья представлена в рамках публикации материалов VIII Евроазиатского симпозиума «Тенденции в магнетизме» (EASTMAG-2022), Казань, август 2022 г.

DOI: 10.31857/S0044451023010078
EDN: NNNOXK

1. ВВЕДЕНИЕ

Двойные мanganиты типа $\text{LnBaMn}_2\text{O}_6$, где Ln — редкоземельные элементы или иттрий, привлекают внимание исследователей с начала 2000 гг. [1–3], когда было обнаружено, что послойное упорядочение ионов Ln и Ba в обычном мanganите «прадориделе» типа $\text{Ln}_{0.5}\text{Ba}_{0.5}\text{MnO}_3$ приводит к существенным изменениям свойств этих материалов, в частности, к изменению основного магнитного состояния с состояния типа спинового стекла на антиферромагнитное и к существенному увеличению температур магнитных фазовых переходов (перехода из парамагнитного в магнитоупорядоченное состояние) [4] и появлению различных видов орбитального упорядоче-

ния [5]. В зависимости от вида редкоземельного иона порядок фазовых переходов в различных подсистемах, которые испытывают двойные мanganиты, может существенно меняться. В частности, как следует из фазовой диаграммы [2, 3], для мanganитов с легкими редкоземельными ионами La , Pr сначала происходит переход из парамагнитного состояния в ферромагнитное, затем — в антиферромагнитное. Такой же порядок фазовых переходов наблюдается и в мanganитах с $\text{Ln} = \text{Nd}$, но температуры фазовых переходов очень близки между собой. Для мanganитов с Sm и более тяжелыми редкоземельными ионами понижение температуры приводит к переходу из парамагнитного состояния в антиферромагнитное через состояние орбитального упорядочения. При этом вид редкоземельного иона, как следует из литературных данных [2, 3], влияет и на характер проводимости (металлический или полупроводниковый) при понижении температуры.

* E-mail: mostovsikova@imp.uran.ru

Несмотря на большое внимание к двойным мanganитам и активному и подробному изучению магнитного, орбитального и зарядового упорядочения, данные об особенностях зарядовой подсистемы в настоящее время недостаточно подробны. В частности, нет подробной информации об изменениях в характере проводимости в зависимости от вида редкоземельного иона и от степени структурного упорядочения. Недавно в работах [6, 7] нами было показано, что изучение поглощения или пропускания света в ближнем инфракрасном (ИК) диапазоне позволяет сделать выводы о переходе металл–изолятор в таких материалах и установить взаимосвязь с магнитными и структурными фазовыми переходами. В связи с этим в настоящей работе предпринята попытка изучения эволюции в зарядовой подсистеме в мanganитах $Ln\text{BaMn}_2\text{O}_6$ в зависимости от Ln иона. В качестве объектов исследования в работе рассматриваются мanganиты с $Ln = \text{Sm}, \text{Nd}, \text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x$. Полученные данные анализируются совместно с полученной ранее информацией о $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$ [6, 7] и проводятся сопоставления с имеющимися фазовыми диаграммами и данными о магнитном состоянии этих материалов.

2. ОБРАЗЦЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Порошки мanganитов $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$ и $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{BaMn}_2\text{O}_6$ с $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$ получены методом топотактической реакции, подробно описанной в [8]. Структурные свойства были исследованы методом рентгеновской порошковой дифракции с использованием дифрактометра Shimadzu XRD-7000 с графитовым монохроматором в $\text{Cu K}\alpha$ излучении. Измерения были проведены в интервале углов от 10° до 110° с шагом 0.03° и временем накопления сигнала 3 с в точке. Кристаллическая структура была определена путем анализа Ритвелда с использованием FullProf.

Магнитные свойства были исследованы с использованием магнитометра Cryogenic CFS 9T CVTI. Температурные зависимости намагниченности были измерены в поле 100 Гц в стандартном режиме охлаждения без магнитного поля с последующим нагревом в магнитном поле. Измерение электросопротивления проводилось стандартным двухконтактным методом на прессованных образцах.

Оптические свойства (спектры и температурные зависимости пропускания света) были измерены в ближнем ИК-диапазоне $0.1\text{--}0.54\text{ }e\text{V}$ в температурном интервале $90\text{--}350\text{ K}$ с использованием призменного спектрометра. Для проведения оптических ис-

следований из порошков изучаемых мanganитов были приготовлены оптические композиты: 3 мг порошка мanganита смешивались с 300 мг порошка CsI (диэлектрик, прозрачный в ближнем ИК-диапазоне), а затем после тщательного перетирания прессовались под давлением 0.5 МПа в полуопрозрачные таблетки диаметром $\sim 10\text{ mm}$ и толщиной $\sim 1\text{ mm}$. Оптическое пропускание мanganита рассчитывалось как $t = I/I_0$, где I и I_0 — интенсивности света, прошедшего через композит мanganит/CsI и таблетку CsI без мanganита, приготовленную по той же технологии. Температурные зависимости пропускания света исследуемых мanganитов измерялись в режиме нагрева с предварительным охлаждением без магнитного поля; скорость изменения температуры составляла $\sim 1\text{ K}/\text{мин}$.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

Сложные оксиды $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$, $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$, $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$ и $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{BaMn}_2\text{O}_6$ при комнатной температуре характеризуются тетрагональной структурой $P4/mmm$. Полученные методом Ле Бейла параметры решетки для ячейки $a_p \times a_p \times 2c_p$ приведены в таблице. На рис. 1 для примера показана дифрактограмма мanganита $\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ при комнатной температуре. На вставке показан сверхструктурный пик в области $d \approx 7.6\text{ \AA}$, который подтверждает формирование структуры с послойным чередованием слоев с Ln ионом и с Ba.

Таблица. Кристаллическая структура, параметры элементарной ячейки и температуры структурных переходов рассматриваемых двойных мanganитов $Ln\text{BaMn}_2\text{O}_6$

Ln ион	$a_p, \text{\AA}$	$c_p, \text{\AA}$	T_s, K
Pr	3.9002(1)	3.8716(1)	180–200
Nd	3.8976(1)	3.8641(1)	270–300
$\text{Nd}_{0.75}\text{Sm}_{0.25}$	3.9150(1)	3.8195(1)	325
$\text{Nd}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}$	3.9193(1)	3.8173(1)	340
$\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}$	3.9181(1)	3.8094(1)	400
Sm	3.9186(1)	3.8135(1)	380–400

Во всех рассматриваемых мanganитах при охлаждении происходит структурный переход. В $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$ в области $\sim 200\text{ K}$ наблюдается структурный переход с сохранением симметрии, но с уменьшением параметра c и увеличением параметра a . Этот структурный переход связывается с $d_{x^2-y^2}$ орбитальным упорядочением [7]. Подобный структурный переход наблюдается и в $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$

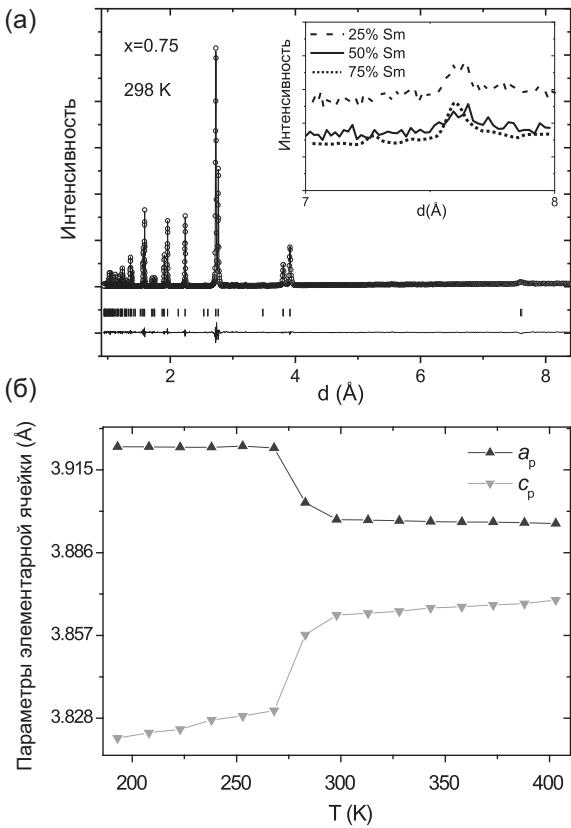


Рис. 1. а) Дифрактограмма $\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ при комнатной температуре. Кружки — экспериментальные точки, огибающая линия — расчетная кривая, вертикальные штрихи — положение дифракционных линий, линия внизу — разность. На вставке часть спектра с области сверхструктурного пика при $d \approx 7.6$ Å. б) Температурная зависимость параметров решетки манганита $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$

(рис. 1б), но при более высоких температурах: 270–300 K.

На рис. 2 показаны температурные зависимости намагниченности манганитов $\text{LnBaMn}_2\text{O}_6$ с $\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x$. Видно, что температуры магнитных фазовых переходов существенно зависят от вида редкоземельного иона. Для манганита $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$ при понижении температуры наблюдается переход из парамагнитного состояния в ферромагнитное вблизи температуры Кюри $T_C = 305$ K и последующий переход в антиферромагнитное состояние вблизи температуры Нееля $T_N = 262$ K с широким температурным гистерезисом (рис. 2а). Близкие значения температур магнитных фазовых переходов (с разницей в 2–5 K) приводятся также авторами работ [4, 9, 10]. Ниже температуры $T = 200$ K, которая соответствует окончанию области уменьшения намагниченности, наблюдается структурный переход при 180–200 K, обусловленный орбитальным упорядочением [7].

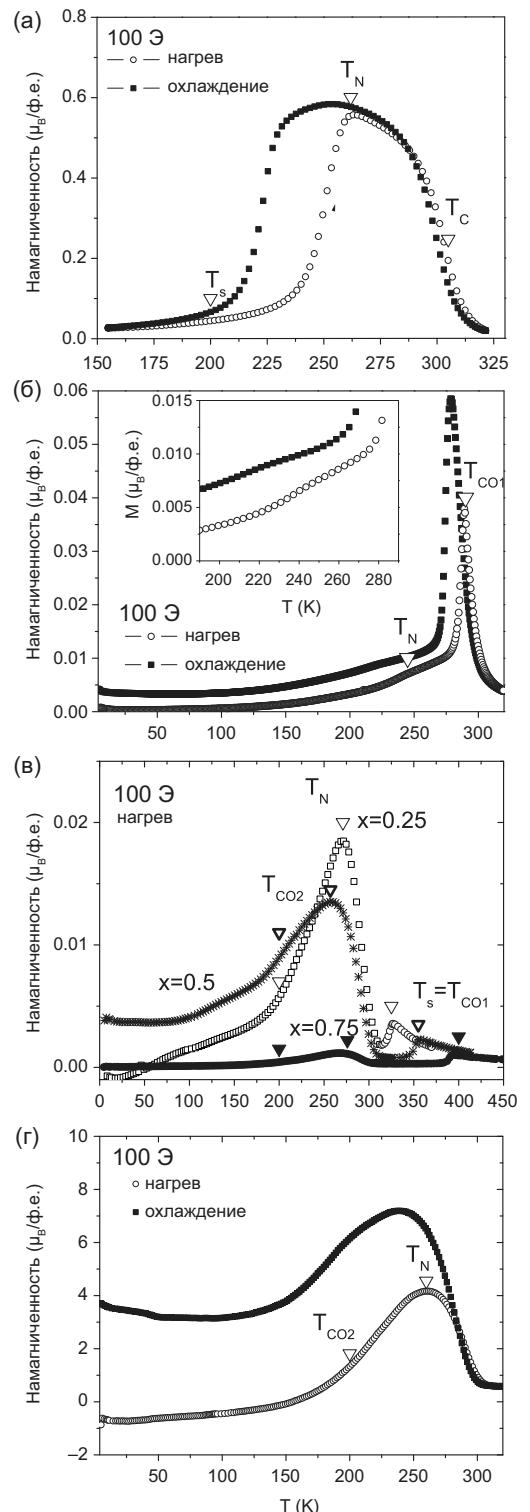


Рис. 2. Температурные зависимости намагниченности манганитов $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$ (а), $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$ (б), $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{BaMn}_2\text{O}_6$ с $x = 0.25, 0.5, 0.75$ (в) и $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$ (г). Треугольниками отмечены температуры фазовых переходов

Манганит $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$ демонстрирует резкий рост намагниченности при охлаждении с максимумом в области 278 К в режиме охлаждения и 288 К в режиме нагрева. В работе [5] сообщается $T_C = 300$ К и $T_N = 275$ К, при этом зависимость $M(T)$ имеет вид узкого пика, а о существовании ферромагнитного вклада делается вывод на основании положительной парамагнитной температуры Кюри. Переход в антиферромагнитное состояние сопровождается структурным переходом, который авторами [5, 11] связывается с орбитальным упорядочением типа $d_{x^2-y^2}$. В работе [11] при подробном изучении монокристаллического $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$ отмечается, что пик на температурной зависимости магнитной восприимчивости при 290 К связан с переходом металл – изолятор, а температура Нееля проявляется в виде «плеча» на этой зависимости при $T = 235$ К. На температурной зависимости намагниченности на рис. 2б также виден изгиб при 230 и 245 К в режиме охлаждения и нагрева соответственно. Анализируя полученные нами данные о температурной зависимости параметров кристаллической решетки и намагниченности и литературные данные [11, 12], мы можем сделать вывод, что пик на кривой $M(T)$ при 278–288 К связан со структурным переходом, который, как будет видно ниже, связан с переходом металл – изолятор, а особенность при 230–245 К — с появлением антиферромагнитного упорядочения.

На кривых $M(T)$ образцов $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{BaMn}_2\text{O}_6$ (рис. 2б) видны два пика намагниченности. Для системы Nd–Sm в области 400–320 К (в зависимости от соотношения ионов Nd и Sm) видна слабая особенность на кривой намагниченности, которая связана с зарядовым упорядочением ионов $\text{Mn}^{3+}/\text{Mn}^{4+}$ и диагональным упорядочением орбиталей типа $d_{3x^2-r^2}/d_{3y^2-r^2}$ [5, 13]. При более низких температурах (в области 220–300 К) наблюдается пик, который является довольно значительным по величине для манганитов с $\text{Nd}_{0.75}\text{Sm}_{0.25}$ и $\text{Nd}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}$ и слабым для $\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}$ и связан с переходом в антиферромагнитное состояние. Значения температуры Нееля, определенные по максимуму намагниченности, равны $T_N = 271, 257, 276$ К для $\text{Nd}_{0.75}\text{Sm}_{0.25}$, $\text{Nd}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}$ и $\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}$ соответственно. В отличие от $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$ в манганитах $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{BaMn}_2\text{O}_6$ при температурах ниже 200 К имеет место еще один переход, связанный с изменением зарядового/орбитального упорядочения: попарное упорядочение (AABB) слоев упорядоченных диагонально орбиталей $d_{3x^2-r^2}/d_{3y^2-r^2}$, которое существует при высоких температурах, сменяется на

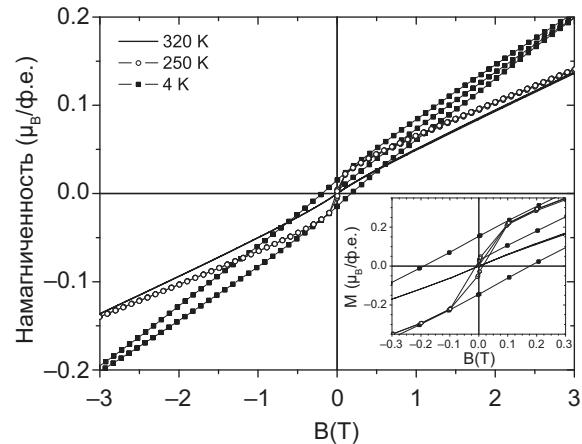


Рис. 3. Кривые намагничивания манганита $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$, измеренные при 320, 250 и 4 К. На вставке область петли гистерезиса в слабых магнитных полях

послойное упорядочение АВАВ при низких температурах [5]. Это переход происходит при $T \approx 200$ К в манганитах $\text{Nd}_{0.75}\text{Sm}_{0.25}$, $\text{Nd}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}$ и $\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}$. Отметим, что по данным работы [14] этот переход имеет температурный гистерезис шириной ~ 30 К, т.е. является переходом первого рода.

Для манганита $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$ в температурных зависимостях намагниченности в области $T < 320$ К имеется две особенности при 250 К и 190–200 К, которые наиболее ярко проявляются при измерении в магнитном поле 10 кЭ. По данным работ [5, 14] в манганите с самарием $T_N = 250$ –260 К, а при 180 К происходит изменение типа орбитального упорядочения AABB – АВАВ (температура такого фазового перехода в литературе обозначена как T_{CO2}). В работе [15] приводится иной порядок фазовых переходов в монокристалле $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$: $T_{CO2} \sim 200$ К, $T_N = 175$ К. Полевые зависимости намагниченности, измеренные при 320, 250 и 4 К и показанные на рис. 3, подтверждают парамагнитное состояние при 320 К, антиферромагнитное состояние со слабым ферромагнитным вкладом при 250 К и антиферромагнитное состояние без ферромагнитного вклада при низких температурах.

Обращают на себя внимание отрицательные значения намагниченности в области низких температур для манганитов $\text{Nd}_{0.75}\text{Sm}_{0.25}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ и $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$ в случае измерения в режиме нагрева после охлаждения без магнитного поля. Такое поведение $M(T)$ может наблюдаться в слабых магнитных полях для анизотропных систем и связано с магнитной предысторией. Это объясняется сильно неравновесным состоянием оксида, магнитными и структурными нарушениями и возникающей односторонней обменной анизотропией. На-

личие однонаправленной обменной анизотропии подтверждается смещенной петлей гистерезиса, как это видно на вставке к рис. 3.

Для исследования фазовых переходов, происходящих в системе носителей заряда, нами были измерены температурные зависимости пропускания света в ближнем ИК-диапазоне в области, которая соответствует спектральному интервалу между краем фундаментального поглощения и началом фононных полос [16]. В этой области в основном проявляется взаимодействие света с носителями заряда. Коэффициент поглощения α , как известно, напрямую связан с проводимостью соотношением

$$\alpha(\omega, T) = \frac{4\pi\sigma(\omega, T)}{cn(\omega, T)}, \quad (1)$$

где n — показатель преломления, c — скорость света, σ — оптическая проводимость, которая пропорциональна проводимости на постоянном токе σ_0 и в общем случае зависит от частоты ω электромагнитного излучения (характер частотной зависимости зависит от типа носителей заряда). Таким образом, при фиксированной частоте ω температурная зависимость поглощения света будет отражать изменения, происходящие в проводимости. Напомним также, что коэффициент поглощения рассчитывается из пропускания t и отражения R по формуле

$$\alpha = \frac{1}{d} \ln \left(\frac{(1 - R)^2}{t} \right), \quad (2)$$

где d — толщина исследуемого образца. Следовательно, зависимость $t(T)$ будет иметь особенности в тех же точках, что и температурная зависимость электросопротивления $\rho(t) = 1/\sigma_0(T)$, и при условии однородного состояния материала будет одинаковый температурный ход.

На рис. 4 показаны температурные зависимости пропускания света, измеренные в области $0.09 < E < 0.4$ эВ, нормированные на наибольшее значение. Отметим, что пропускание CsI, используемого в качестве матрицы при изготовлении композитов с исследуемыми мanganитами, слабо и линейно меняется с изменением температуры. На рис. 4 также приведены значения температур магнитных и структурных фазовых переходов, определенные выше. Видно, что вблизи этих температур на зависимостях $t(T)$ наблюдаются изломы. Для мanganита $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$ температурный коэффициент dt/dT положителен выше температуры Нееля, но скорость изменения пропускания с изменением температуры мала. Слабый «металлический» характер пропускания с этой области согласуется с существованием ферромагнитного

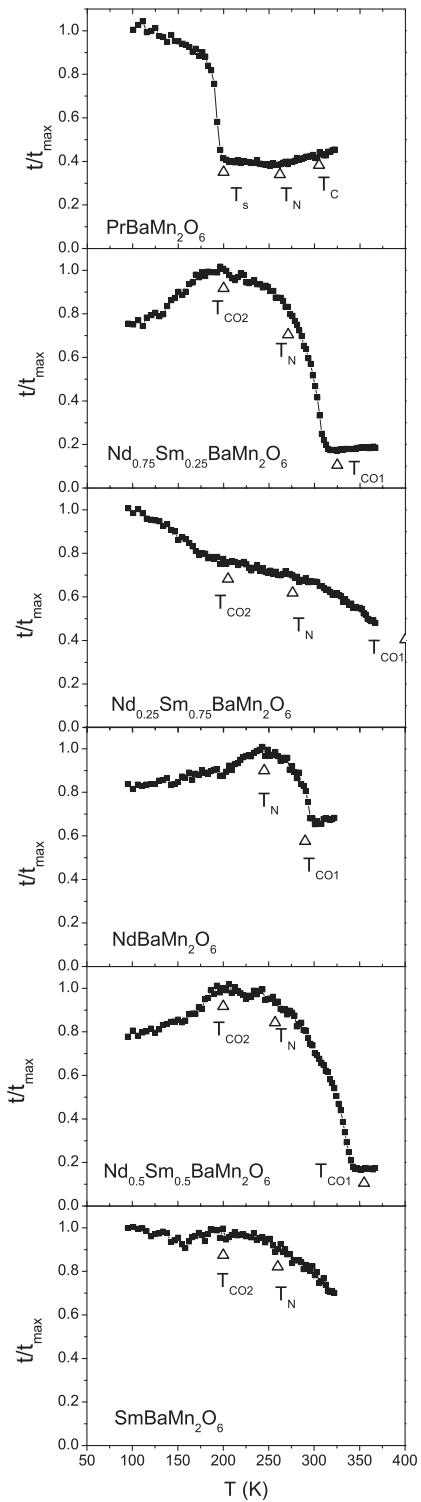


Рис. 4. Температурные зависимости пропускания, нормированного на максимальное значение, мanganитов $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$, $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$, $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{BaMn}_2\text{O}_6$ и $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$, измеренные при $E = 0.15$ эВ. Светлыми треугольниками отмечены температуры фазовых переходов

упорядочения. В области $T < T_N$ коэффициент dt/dT меньше нуля, что обычно характерно для полупроводников. При этом в диапазоне $\sim 180\text{--}200\text{ K}$ наблюдается наиболее резкое изменение пропускания. Напомним, что эта область температур соответствует области структурного фазового перехода.

Для мanganита $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$ зависимость $t(T)$ имеет иной характер. В области $T > 300\text{ K}$ пропускание слабо растет при увеличении температуры, т.е. наблюдается слабый металлический ход. При $240\text{ K} < T < 300\text{ K}$ температурный коэффициент dt/dT отрицателен, т.е. проводимость в системе имеет полупроводниковый характер в той температурной области, где начинает резко увеличиваться намагниченность. В области $T \sim 240\text{ K}$ происходит смена поведения $t(T)$, и при $T < 240\text{ K}$ температурная зависимость пропускания имеет металлический характер ($dt/dT > 0$). Отметим, что по литературным данным мanganит $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$ имеет полупроводниковый характер сопротивления во всем температурном интервале $5\text{--}400\text{ K}$ с небольшим изгибом в области T_N в случае поликристаллического образца [5]. Для монокристалла [11] при измерении сопротивления вдоль оси c характер $\rho(T)$ тоже полупроводниковый в области $100\text{--}290\text{ K}$, а около $T = 290\text{ K}$ наблюдается резкое, почти скачкообразное изменение сопротивления. При более высоких температурах $\rho(T)$ имеет слабый металлический ход. Можно предположить, что металлический характер проводимости, обнаруженный нами ниже 250 K в мanganите $\text{NdBaMn}_2\text{O}_6$, обусловлен ферромагнитным упорядочением в плоскости ab в антиферромагнитной структуре А-типа. Для выяснения этого вопроса необходимо более детальное исследование с использованием монокристаллических образцов.

Мanganиты $\text{Nd}_{0.75}\text{Sm}_{0.25}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ и $\text{Nd}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ имеют одинаковый характер зависимостей $t(T)$. В области перехода в состояние с зарядовым/орбитальным упорядочением (T_{CO1}) начинается сильный рост пропускания света при понижении температуры, вблизи T_N рост замедляется, а ниже T_{CO2} пропускание уменьшается. Вероятно, смена типа орбитального упорядочения с ААВВ, которое реализуется в области температур $T_{CO2} < T < T_{CO1}$, на упорядочение АВАВ, возникающее при $T < T_{CO2}$, приводит к появлению в слоях металлической проводимости, аналогично тому, как это имеет место в антиферромагнетике А-типа. Отметим, что похожий характер температурных зависимостей пропускания $\text{Nd}_{0.75}\text{Sm}_{0.25}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ и

$\text{Nd}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ коррелирует с тем, что зависимости $M(T)$ для двух этих мanganитов близки между собой.

Температурные зависимости $t(T)$ для мanganитов $\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ и $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$ также имеют схожие черты. В обоих случаях наблюдается уменьшение пропускания с ростом температуры с изломами вблизи T_N и T_{CO2} , но металлический характер $t(T)$ в образце $\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}\text{BaMn}_2\text{O}_6$ не появляется, а в $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$ коэффициент dt/dT имеет маленькую величину по сравнению с рассмотренными выше мanganитами. Наблюдаемый слабый металлический вклад в $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$ согласуется с существованием ферромагнитного вклада по данным кривых намагничивания (рис. 3). Отметим, что в работе [15] температурные зависимости сопротивления монокристалла $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$, измеренные вдоль осей a и c в интервале $150\text{--}400\text{ K}$, не демонстрируют перехода металл–изолятор.

Из сравнения температурных зависимостей пропускания мanganитов $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{BaMn}_2\text{O}_6$ и $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$ можно предположить, что состав с $x = 0.75$ ближе по свойствам к $\text{SmBaMn}_2\text{O}_6$, чем к образцу с $x = 0.5$. Как следует из фазовой диаграммы [2, 4, 12], при переходе от Nd к Sm в ряду редкоземельных ионов, используемых в двойных мanganитах, происходит смена типа антиферромагнитной структуры со структуры А-типа, для которой характерно антиферромагнитное выстраивание вдоль оси c ферромагнитно упорядоченных слоев ab , на структуру типа СЕ с зигзагообразными ферромагнитными цепочками.

В работе [17] из расчетов электронной структуры с учетом кулоновских корреляций показано, что антиферромагнитное состояние А-типа является металлическим, а СЕ-типа — изолирующим. Таким

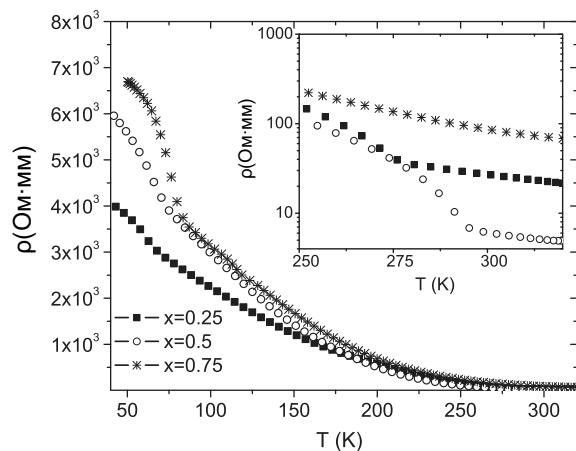


Рис. 5. Температурные зависимости сопротивления мanganитов $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{BaMn}_2\text{O}_6$ с $x = 0.25, 0.5, 0.75$

образом, различие в температурных зависимостях пропускания для двойных мanganитов $Nd_{0.5}Sm_{0.5}BaMn_2O_6$ и $Nd_{0.25}Sm_{0.75}BaMn_2O_6$ может объясняться разными типами основного антиферромагнитного состояния.

Для мanganитов $Nd_{0.75}Sm_{0.25}BaMn_2O_6$, $Nd_{0.5}Sm_{0.5}BaMn_2O_6$ и $Nd_{0.25}Sm_{0.75}BaMn_2O_6$ были измерены температурные зависимости сопротивления (рис. 5). Зависимости $\rho(T)$ образцов $Nd_{1-x}Sm_xBaMn_2O_6$ имеют полупроводниковый характер в измеренном температурном интервале 50–320 К с изгибами в области T_{CO1} . Аналогичный вид температурных зависимостей сопротивления приводится в литературе для поликристаллов $PrBaMn_2O_6$ [4, 18], $NdBaMn_2O_6$ [3, 4] и $SmBaMn_2O_6$ [3, 15]. В то же время для монокристаллов характер кривых $\rho(T)$ имеет некоторые отличия в виде более резких (на 2–2.5 порядка) изменений сопротивления в области температуры структурного перехода и орбитального упорядочения [11, 15]. Таким образом, измерение электросопротивления на поликристаллических образцах не всегда дает точную информацию о проводимости в двойных мanganитах за счет усреднения по направлениям кристаллитов, а также за счет вклада межзеренных границ. Это может объяснить подобие температурных зависимостей $\rho(T)$ для поликристаллических двойных мanganитов с разными редкоземельными ионами, хотя данные для монокристаллов могут отличаться. В результате температурные зависимости пропускания, которые являются чувствительными к наличию металлического типа проводимости в материалах в отдельных слоях или отдельных областях, могут различаться при похожем характере сопротивления.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенный анализ структурных, магнитных и оптических данных мanganитов $LnBaMn_2O_6$ с $Ln = Pr, Nd, Sm, Nd_{1-x}Sm_x$ ($x = 0.25, 0.5, 0.75$) указывает на изменение характера проводимости в двойных мanganитах при фазовых переходах со структурным/орбитальным упорядочением. Отличие температурных зависимостей пропускания мanganитов $PrBaMn_2O_6$ от зависимостей остальных рассмотренных мanganитов связано с различием в порядке фазовых переходов. В случае с празеодимом $T_s(Too) < T_N < T_C$, а для остальных мanganитов реализуется $T_{CO2} < T_N < T_{CO1}$. Кроме того, разные характеры зависимостей $t(T)$ ниже температур структурного перехода и орбитального упорядоче-

ния (полупроводниковый для $PrBaMn_2O_6$ и металлический для $NdBaMn_2O_6$, $Nd_{0.75}Sm_{0.25}BaMn_2O_6$ и $Nd_{0.5}Sm_{0.5}BaMn_2O_6$) связываются с разными типами орбитального упорядочения. Различие поведения $t(T)$ мanganитов $NdBaMn_2O_6$, $Nd_{0.75}Sm_{0.25}BaMn_2O_6$ и $Nd_{0.5}Sm_{0.5}BaMn_2O_6$, с одной стороны, и $Nd_{0.25}Sm_{0.75}BaMn_2O_6$ и $SmBaMn_2O_6$, с другой, связывается с различными видами основного антиферромагнитного состояния (A-типа и CE-типа соответственно). Отметим, что по данным работы [17] выигрыш энергии в пользу CE-антиферромагнитного изолирующего состояния по сравнению с металлическим A-антиферромагнитным незначителен и стабилизируется за счет ян-теллеровских искажений. Для изучения возможного металлического состояния в двойных мanganитах при низких температурах необходимо детальное изучение монокристаллических образцов.

Благодарности. Авторы выражают благодарность С.А. Упорову (ИМЕТ УрО РАН) за выполнение магнитных измерений.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант № 22-22-00507).

ЛИТЕРАТУРА

1. S. V. Trukhanov, I. O. Troyanchuk, M. Hervieu et al., Phys. Rev. B **66**, 184424 (2002).
2. T. Nakajima, H. Kageyama, H. Yoshizawa et al., J. Phys. Soc. Japan **71**, 2843 (2002).
3. D. Akahoshi, M. Uchida, Y. Tomioka et al., Phys. Rev. Lett. **90**, 177203 (2003).
4. T. Nakajima, H. Yoshizawa, and Y. Ueda, J. Phys. Soc. Japan **73**, 2283 (2004).
5. D. Akahoshi, Y. Okimoto, M. Kubota et al., Phys. Rev. B **70**, 064418 (2004).
6. E. V. Mostovshchikova, E. V. Sterkhov, S. V. Naumov et al., J. Magn. Magn. Mater. **538**, 168247 (2021).
7. E. V. Sterkhov, N. M. Chtchelkatchev, E. V. Mostovshchikova et al., J. Alloys Comp. **892**, 162034 (2021).
8. S. G. Titova, E. V. Sterkhov, and S. A. Uporov, J. Supercond. Novel Magn. **33**, 1899 (2020).
9. T. Nakajima, H. Kageyama, and Y. Ueda, J. Magn. Magn. Mater. **272–276**, 405 (2004).
10. N. Tanikawa, H. Takada, M. Hori et al., J. Phys. Soc. Japan **88**, 104706 (2019).

11. S. Yamada, H. Sagayama, K. Higuchi et al., Phys. Rev. B **95**, 035101 (2017).
12. T. Nakajima, H. Kageyama, H. Yoshizawa et al., J. Phys. Soc. Japan **72**, 3237 (2003).
13. T. Arima, D. Akahoshi, K. Oikawa et al., Phys. Rev. B **66**, 140408(R) (2002).
14. H. Sagayama, S. Toyoda, K. Sugimoto et al., Phys. Rev. B **90**, 241113(R) (2014).
15. S. Yamada, Y. Maeda, and T. Arima, J. Phys. Soc. Japan **81**, 113711 (2012).
16. N. N. Loshkareva, Yu. P. Sukhorukov, E. V. Mostovshchikova et al., JETP **94**, 350 (2002).
17. S. V. Streltsov, R. E. Ryltsev, and N. M. Chtchelkatchev, J. Alloys Comp. **912**, 165150 (2022).
18. S. V. Trukhanov, L. S. Lobanovski, M. V. Bushinsky et al., J. Phys.: Condens. Matter **17**, 6495 (2005).