

05,11

## Флуктуации параметров порядка в манганитах $R_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ вблизи фазового перехода металл—диэлектрик

© Ф.Н. Буханько, А.Ф. Буханько

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины, Донецк, Украина

E-mail: buhanko@mail.fti.ac.donetsk.ua

(Поступила в Редакцию 13 августа 2012 г.)

В окончательной редакции 28 декабря 2012 г.)

Экспериментально исследованы магнитные фазовые превращения в манганитах с почти половинным заполнением зоны проводимости вблизи фазового перехода металл—диэлектрик, индуцированные изменением состава, напряженности внешнего магнитного поля и температуры. Найдено, что замещение Nd ионом с меньшим радиусом (Sm) в манганитах  $R_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  приводит к линейному уменьшению  $T_c$  от 270 до 130 К и трансформации ферромагнитного (ФМ) фазового перехода второго рода к переходу первого рода. Результаты измерения ас-магнитной восприимчивости в системе  $(\text{Nd}_{1-y}\text{Sm}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  свидетельствуют о существовании фазы, подобной фазе Гриффитса, в образцах с концентрацией  $y > 0.5$  в интервале температур  $T_c < T < T^*$  (где  $T^* \sim 220$  К). В изотермах намагниченности, полученных для образцов с  $y > 0.5$ , при температурах выше  $T_c$  обнаружены особенности в виде обратимых метамагнитных фазовых переходов, связанных с сильными флуктуациями ближнего ФМ-порядка в системе спинов Mn в высокотемпературной фазе Гриффитса, состоящей из ФМ-кластеров. Согласно результатам измерений ас-магнитной восприимчивости в системе  $(\text{Sm}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  для концентрации гадолиния  $y = 0.5$ , обнаружено существование антиферромагнитной (АФМ) фазы с необычно низкой критической температурой упорядочения спинов  $T_N \cong 48.5$  К. Увеличение внешнего статического магнитного поля при 4.2 К привело к необратимому индуцированию ФМ-фазы, устойчивой в интервале температур 4.2–60 К. В интервале температур  $60 < T < 150$  К реализуется высокотемпературная фаза, подобная фазе Гриффитса, состоящая из кластеров (корреляций) с локальным зарядовым/орбитальным упорядочением. Метастабильная АФМ-структура сохраняется в образцах с концентрацией  $y = 0.6$  и  $0.7$ , но разрушается при дальнейшем росте концентрации гадолиния с переходом в спин-стекольное состояние. Согласно изотерме намагниченности, полученной при изменении внешнего статического магнитного поля в интервале полей  $\pm 70$  кОе при 4.2 К, и температурной зависимости ас-магнитной восприимчивости  $\chi$ , в керамике  $\text{Gd}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  реализуется смешанное двухфазное низкотемпературное состояние, состоящее из квантовой фазы Гриффитса с характерной расхожимостью  $\chi(T)$  вблизи  $T = 0$ , внедренной в спин-стекольную матрицу с температурой „замерзания“ спинов  $T_G \cong 42$  К. Низкотемпературное состояние с квантовыми флуктуациями существует в системе  $(\text{Sm}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  для  $y \geq 0.5$ .

### 1. Введение

Фазовые превращения и критические явления в манганитах  $A_{1-x}A'_x\text{MnO}_3$  ( $A = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}$ ;  $A' = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$ ) с почти половинным заполнением зоны проводимости ( $x \approx 0.5$ ) были рассмотрены ранее в обзоре Токуры [1]. Показано, что в основе разнообразия электронных и магнитных свойств этих соединений лежит конкуренция между металлической ферромагнитной (ФМ) фазой и диэлектрической антиферромагнитной (АФМ) фазой (обычно SE-типа) с зарядовым орбитальным (СО/ОО) упорядочением. Главным параметром, управляющим конкуренцией этих двух фаз, является энергия переноса заряда  $e_g$  электронами или, другими словами, ширина зоны проводимости  $W$ , которая определяется средним радиусом  $\langle r_A \rangle$  редкоземельного иона, замещающего лантан в А-позициях перовскитоподобной матрицы. Изменение  $r_A$  приводит к бикритической фазовой диаграмме [2], в которой ферромагнитная фаза (большие  $r_A$ ) отделена от антиферромагнитной (малые  $r_A$ ) фазовым переходом первого рода. Беспорядок, возникающий из

локальных искажений А-позиций при случайном замещении катионов с большим ионным радиусом катионами с малым радиусом (quenched disorder), может существенно изменить вид электронной фазовой диаграммы и магнитоэлектронные свойства вблизи бикритической точки на границе двух конкурирующих фаз. Поведение манганитов со слабым беспорядком вблизи бикритической точки было теоретически рассмотрено Мураками в [3]. В рамках RG-модели с учетом тепловых и квантовых флуктуаций вблизи границы между двумя фазами, соответствующей критической ширине зоны проводимости  $W_c$ , были предсказаны характерные особенности, которые должны наблюдаться в эксперименте вблизи бикритической точки. Эти эффекты возникают из-за гигантской флуктуации нескольких параметров порядка (ферромагнитного, антиферромагнитного, орбитального, зарядового), связанной с бикритичностью, которая резко усиливается вблизи границы двух фаз. Как было показано в ряде теоретических работ [4–7], в манганитах даже с умеренным беспорядком фазовая диаграмма становится несимметричной. При этом ферромагнетизм

подавляется, но продолжает существовать при конечных температурах, тогда как СО-состояние исчезает, а вместо него при низких температурах довольно часто реализуется стекольное состояние с температурой „замерзания“ спинов  $T_G$ , не зависящей от дальнейшего уменьшения  $\langle r_A \rangle$ .

В работе [8] на основе многочисленных экспериментальных результатов была построена расширенная фазовая диаграмма манганитов  $R_{0.55}A_{0.45}MnO_3$  со слабым структурным беспорядком, в которой критические температуры электронных и магнитных фазовых переходов приведены в виде функций среднего катионного радиуса  $\langle r_A \rangle$  в А-позиции в интервале значений радиуса 1.26–1.40 Å. Фазовая диаграмма разделена на две половины относительно бикритической точки, соответствующей значению среднего радиуса  $\langle r_A \rangle_{cr} \approx 1.33$  Å: при  $\langle r_A \rangle \leq \langle r_A \rangle_{cr}$  в области низких температур стабилизируются фазы с зарядовым и антиферромагнитным спиновым упорядочением, тогда как при  $\langle r_A \rangle \geq \langle r_A \rangle_{cr}$  доминирует металлическая ферромагнитная фаза. В манганитах с сильным структурным беспорядком фазовая диаграмма становится асимметричной: ферромагнетизм подавляется, но продолжает существовать при конечных температурах, тогда как СО-состояние исчезает, а вместо него при низких температурах реализуется стекольное состояние. Согласно построенной в [9] электронной фазовой диаграмме манганитов  $R_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  ( $R = Pr, Nd, Sm, Eu, Gd$ ) с сильным структурным беспорядком, критическое значение среднего катионного радиуса  $\langle r_A \rangle_{cr} \approx 1.33$  Å соответствует соединению  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ . Соединения  $Sm_{1-x}Sr_xMnO_3$  проявляют некоторые необычные свойства, особенно в интервале критических концентраций  $Sr$   $0.4 \leq x \leq 0.5$ . Они обладают относительно низкой температурой Кюри перехода в ФМ-состояние  $T_c \sim 130$  К и имеют колоссальное магнетосопротивление вблизи  $T_c$ .

Фазовый переход между металлическим ферромагнитным состоянием и диэлектрическим состоянием с сильными короткодействующими зарядовыми/орбитальными корреляциями был исследован в монокристаллах  $(Sm_{1-x}Gd_x)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) [9]. Было установлено, что структурный беспорядок за счет локальных искажений решетки увеличивает электронные и магнитные флуктуации и препятствует появлению дальнего порядка. В системе  $(Sm_{1-x}Gd_x)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  низкотемпературное состояние в нулевом магнитном поле для  $0 \leq x \leq 0.5$  проявляет свойства металла, тогда как в случае  $x = 0.7$  индуцированное внешним магнитным полем металлическое состояние возникает только при  $H \sim 3$  Т при температурах ниже 50 К. С ростом напряженности магнитного поля происходит стабилизация металлического ферромагнитного состояния. Вблизи фазового перехода диэлектрик–металл наблюдаются разрывы в температурных зависимостях сопротивления и намагниченности образцов, которые сопровождаются гистерезисом, что характерно для фазового перехода первого рода. Систематическое изучение электронных и магнитных свойств монокристаллов

$(Sm_{1-x}Gd_x)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  показало, что металлическое ферромагнитное состояние сохраняется с ростом  $x$  до значения  $x \sim 0.5$ , при этом температура  $T_c$  фазового перехода парамагнетик–ферромагнетик линейно уменьшается от  $\sim 130$  до  $\sim 50$  К. Для значений  $x \geq 0.6$  стабилизируется фаза спинового стекла с температурой „замерзания“ спинов  $T_G$  вблизи 50 К. Признаки разделения фаз в исследованных образцах не были обнаружены. Полученные особенности температурных и полевых зависимостей намагниченности и сопротивления монокристалла  $(Sm_{0.5}Gd_{0.5})_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  хорошо согласуются с данными исследования температурных зависимостей интенсивностей диффузного рассеяния рентгеновских лучей и рамановского спектра фононов, свидетельствующего о существовании гигантской короткодействующей СО/ОО-корреляции при температурах выше  $T_c \cong 65$  К.

Ранее в образцах керамики  $(Sm_{0.5}Gd_{0.5})_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в нулевом внешнем магнитном поле был обнаружен не зависящий от частоты измерения острый пик магнитной восприимчивости вблизи температуры 48.5 К с небольшим температурным гистерезисом, который сопровождался ростом восприимчивости с понижением температуры. Подобный пик магнитной восприимчивости характерен для фазового перехода в АФМ-состояние с дальнедействующим зарядовым/орбитальным упорядочением [10]. Изотермы намагниченности в статических и импульсных магнитных полях при температурах ниже 60 К демонстрируют необратимый метамагнитный переход в однородное ферромагнитное состояние с критическим полем перехода, не зависящим от температуры измерений. Необратимый метамагнитный переход связан, по-видимому, с разрушением диэлектрического состояния с дальнедействующим зарядовым упорядочением. В интервале температур  $60 \leq T \leq 150$  К наблюдался индуцированный магнитным полем обратимый фазовый переход в ферромагнитное состояние (подобный метамагнитному переходу в низкотемпературной фазе), вызванный разрушением локальных зарядовых/орбитальных корреляций. С ростом температуры наблюдались практически линейный рост критических полей перехода и исчезновение полевого гистерезиса.

Целью настоящей работы является экспериментальное исследование магнитных фазовых превращений в манганитах с почти половинным заполнением зоны проводимости вблизи фазового перехода металл–диэлектрик, индуцированных изменением состава, напряженности внешнего магнитного поля и температуры. Для достижения указанной цели изучалось влияние изовалентного замещения ионов  $Nd^{3+}$  ( $r_{Nd} = 1.163$  Å) редкоземельными ионами  $Sm^{3+}$  ( $r_{Sm} = 1.132$  Å) и  $Gd^{3+}$  ( $r_{Gd} = 1.107$  Å) меньшего радиуса на магнитные свойства манганитов.

## 2. Методика эксперимента

В настоящей работе серии образцов  $(Nd_{1-y}Sm_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  ( $y = 0, 0.5, 0.6, 0.7, 1.0$ )

и  $(Sm_{1-y}Gd_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  ( $y = 0, 0.5, 0.6, 0.7, 1.0$ ) были приготовлены в одинаковых условиях с целью избежать влияния на результаты эксперимента побочных эффектов. Образцы были синтезированы с использованием окислов неодима, самария, гадолиния, стронция и марганца высокой чистоты, взятых в стехиометрическом соотношении. Смесь была растворена в разведенной (1:1) азотной кислоте. Полученный раствор был выпарен до полного удаления воды, что сопровождалось разрушением азотно-кислых солей при  $500-700^\circ\text{C}$ . Полученный продукт растирался в порошок и затем отжигался при температуре  $900-950^\circ\text{C}$  для удаления остатков разложения азотнокислых солей. Представленный выше технологический процесс приводил к однородному распределению составляющих элементов в образцах. Синтезированный порошок прессовался в брикеты диаметром 15 мм и отжигался при температурах  $1000, 1100^\circ\text{C}$  в течение 10 ч и при  $1150^\circ\text{C}$  в течение 24 ч с промежуточным растиранием в порошок. С целью получения образцов керамики для измерений намагниченности порошок прессовался под давлением 10 kbar в таблетки диаметром 6 мм и толщиной 1.2 мм. Затем таблетки спекались на воздухе при  $1150^\circ\text{C}$  в течение 10 ч с последующим снижением температуры со скоростью  $70^\circ\text{C/h}$ . Полученные таблетки представляли собой однофазную по рентгеновским данным керамику. Для контроля гомогенности образцов, а также для установления особенностей в изменениях параметров решетки, вызванных изменениями стехиометрии образцов, использовался метод дифракции рентгеновских лучей. Рентгенографические исследования проводились при 300 К на дифрактометре ДРОН-1.5 в излучении  $Ni\ K_{\alpha 1+\alpha 2}$ . Симметрия и параметры кристаллической решетки определялись по положению и характеру расщепления рефлексов псевдокубической решетки перовскита. Исходный образец  $Nd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ , соответствующий концентрации Sm  $y = 0$ , имел орторомбическую структуру  $Pbnm$  с близкими параметрами  $a = 5.492 \text{ \AA}$ ,  $b = 5.455 \text{ \AA}$ ,  $c/\sqrt{2} = 5.447 \text{ \AA}$ . С увеличением содержания примеси Sm и Gd орторомбические искажения кристаллической решетки незначительно уменьшались, о чем свидетельствует изменение в интервале  $2\theta = 74.0-75.5^\circ$  участка дифрактограммы, соответствующей триплету  $(400 + 040 + 224)$ . Температурные зависимости ас-магнитной восприимчивости  $\chi(T)$  измерялись индукционным методом в относительных единицах на частоте  $f \cong 1 \text{ kHz}$  в измерительном поле  $h \cong 60 \text{ Oe}$  в интервале температур  $20-200 \text{ K}$ , а также на частотах  $f = 1, 5, 7$  и  $10 \text{ kHz}$  в интервале температур  $4.2-100 \text{ K}$  с помощью промышленной установки РРМС-10 в измерительном поле  $h \cong 17 \text{ Oe}$ . Полевые зависимости дс-намагниченности  $M(H)$  измерялись в интервале температур  $4.2-300 \text{ K}$  в импульсных и статических магнитных полях. При импульсных измерениях магнитное поле изменялось в интервале  $\pm 200 \text{ kOe}$  за одну микросекунду. Измерения в импульсных полях напряженностью до  $300 \text{ kOe}$  при различных температурах от  $20$  до  $300 \text{ K}$  производились в относительных единицах

с помощью непромышленного импульсного магнитометра, а измерения в статических полях напряженностью до  $75 \text{ kOe}$  были проведены с помощью вибрационного магнитометра VSM EGG, Princeton Applied Reserch при  $4.2 \text{ K}$ .

### 3. Экспериментальные результаты и обсуждение

3.1. Система  $(Nd_{1-y}Sm_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ . Как видно из рис. 1, с ростом концентрации Sm от  $y = 0$  до 1 температурные зависимости дс-намагниченности  $M(T)$  претерпевают существенные изменения: вместо плавного „размазанного“ в широком интервале температур роста намагниченности с особенностью вблизи  $T_c \sim 270 \text{ K}$  при  $y = 0$  происходит смещение кривых намагниченности к более низкой температуре  $T_c \sim 130 \text{ K}$  для  $y = 1$ . Полевые зависимости намагниченности  $M(H)$  всех образцов, измеренные в статических полях при  $77 \text{ K}$ , соответствуют стабилизации в низкотемпературной фазе  $(Nd_{1-y}Sm_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  однородного ферромагнитного состояния. Резкий скачок  $M(T)$  вблизи  $T_c \sim 130 \text{ K}$  в  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  свидетельствует о том, что замещение Nd ионом с меньшим радиусом (Sm) приводит к трансформации плавного ФМ-фазового перехода второго рода к скачкообразному ФМ-переходу первого рода. Построенные зависимости критической температуры  $T_c$  от концентрации Sm в образцах (рис. 2) в статических измерительных полях  $1.5$  и  $9.7 \text{ kOe}$  состоят из двух отрезков прямых с различным наклоном. Как видно из рис. 2, наклон зависимостей  $T_c(y)$  с ростом  $y$  для  $y \geq 0.5$  резко возрастает, что свидетельствует об изменении механизма обменного взаимодействия с ростом концентрации Sm. Более того, чувствительность температуры Кюри к действию внешнего магнитного поля с ростом  $y$  также сильно возрастает. Обнаруженное изменение характера ФМ-фазового перехода с ростом concentra-

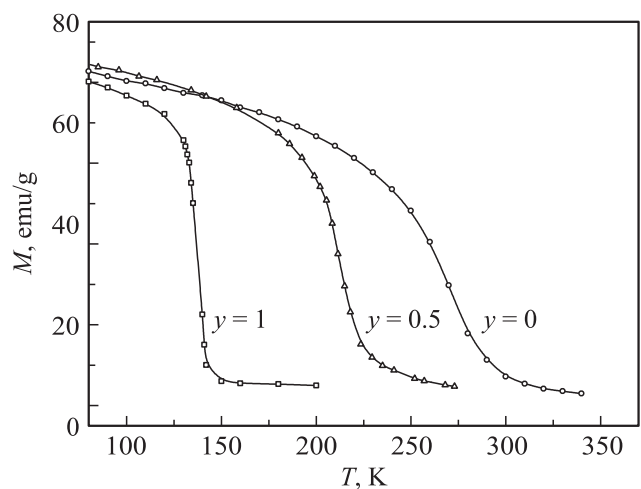
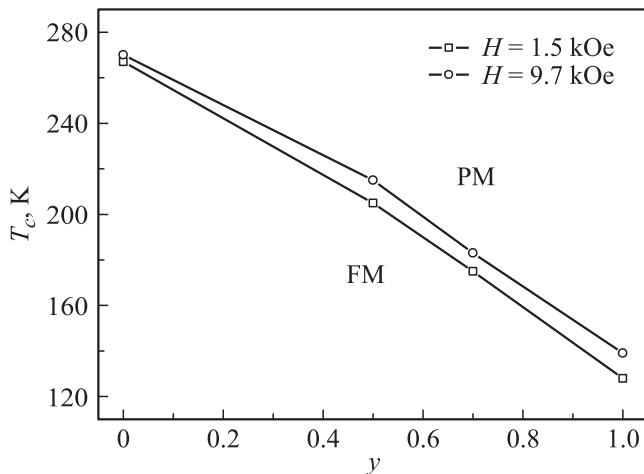


Рис. 1. Температурные зависимости намагниченности  $M(T)$  образцов системы  $(Nd_{1-y}Sm_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ , полученные в измерительном поле  $9.7 \text{ kOe}$ .



**Рис. 2.** Концентрационные зависимости критических температур  $T_c(y)$  перехода в ферромагнитное состояние в системе  $(\text{Nd}_{1-y}\text{Sm}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ . FM — ферромагнитная фаза, PM — парамагнитная фаза.

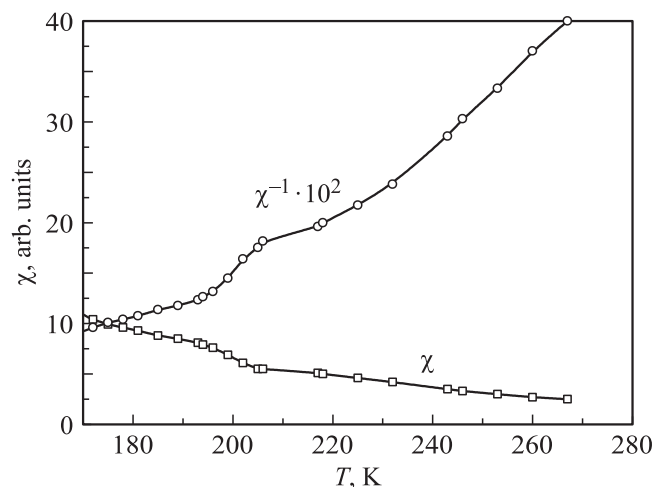
ции Sm, а также резкое снижение  $T_c$  от  $\sim 270$  К для  $\text{Nd}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  до  $\sim 130$  К для  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  и особенности концентрационных и полевых зависимостей температуры Кюри хорошо согласуются с литературными данными о магнитных свойствах манганитов с почти половинным заполнением  $e_g$  зоны проводимости вблизи бикритической точки [1].

Результаты измерения магнитной восприимчивости в системе  $(\text{Nd}_{1-y}\text{Sm}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  при температурах выше  $T_c$  свидетельствуют о существовании необычного неоднородного состояния спинов Mn, подобного фазе Гриффитса [11], в образцах с концентрацией  $y > 0.5$  в интервале температур  $T_c < T < T^*$  ( $T^* \sim 220$  К). Это предположение подтверждается также аномальным поведением изотерм намагниченности в высокотемпературной фазе, полученных в сильных импульсных магнитных полях. Впервые существование фазы, подобной фазе Гриффитса (далее фаза GP), было обнаружено в монокристалле  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  в виде системы ФМ-кластеров внутри парамагнитной матрицы при измерениях намагниченности [12]. Температурная зависимость обратной восприимчивости  $\chi^{-1}(T) = H/M(T)$ , полученная в измерительном поле 1 кОе, в области высоких температур соответствует закону Кюри–Вейсса с парамагнитной температурой Кюри  $\Theta = 202$  К. При температурах несколько выше критической температуры  $T_c = 218$  К наклон экспериментальной кривой  $\chi^{-1}(T)$  значительно меньше, чем в области высоких температур. Более того, был обнаружен резкий спад в зависимости  $\chi^{-1}(T)$  с понижением температуры вблизи  $\sim 230$  К перед тем, как достигалась температура Кюри. Авторы объяснили эти особенности как сингулярность Гриффитса, для которой характерна зависимость  $\chi^{-1}(T) \propto (T - T_c)^{1-\lambda}$ , где  $\lambda \leq 1$ . Аналогичный результат был получен в сплаве  $\text{Tb}_5\text{Si}_2\text{Ge}_2$  [13] при измерениях

обратной dc-магнитной восприимчивости  $\chi^{-1}(T)$  как функции температуры при нагреве образца в слабых магнитных полях.

В данной работе было обнаружено несколько характерных признаков существования фазы Гриффитса внутри парамагнитной матрицы в системе  $(\text{Nd}_{1-y}\text{Sm}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  в образцах с  $y > 0.5$  при температурах  $T \geq T_c$ . Измерения магнитной восприимчивости производились в серии керамических образцов  $(\text{Nd}_{1-y}\text{Sm}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  ( $0 \leq y \leq 1$ ) в переменных полях напряженностью  $\sim 60$  Ое в интервале температур 77–300 К. В образцах с концентрацией Sm  $y \leq 0.5$  в пределах ошибки измерений не было обнаружено никаких отклонений кривых  $\chi^{-1}(T)$  при температурах  $T > T_c$  от закона Кюри–Вейсса, характерного для однородного парамагнетика. Однако в образцах с  $y > 0.5$  наклон кривых  $\chi^{-1}(T)$  в области температур  $T > 220$  К значительно больше, чем наклон кривых в интервале более низких температур  $T_c < T < 220$  К. С ростом концентрации Sm разница в наклоне кривых  $\chi^{-1}(T)$  в высокотемпературном и низкотемпературном интервалах температур растет. Особенно четко существование двух режимов поведения спинов Mn при температурах выше  $T_c$  проявилось в образце  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ , для которого в настоящей работе при температурах, меньших 220 К (рис. 3), обнаружено резкое ступенчатое падение  $\chi^{-1}(T)$ , аналогичное найденному в [12,13]. Таким образом, полученные результаты измерения ac-магнитной восприимчивости в системе  $(\text{Nd}_{1-y}\text{Sm}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  свидетельствуют о формировании высокотемпературной фазы GP в образцах с концентрацией  $y > 0.5$  в интервале температур  $T_c < T < T^*$  (где  $T^* \sim 220$  К).

Согласно [5], вращение разупорядоченных моментов ФМ-кластеров в фазе Гриффитса может осуществляться относительно малыми магнитными полями. При этом

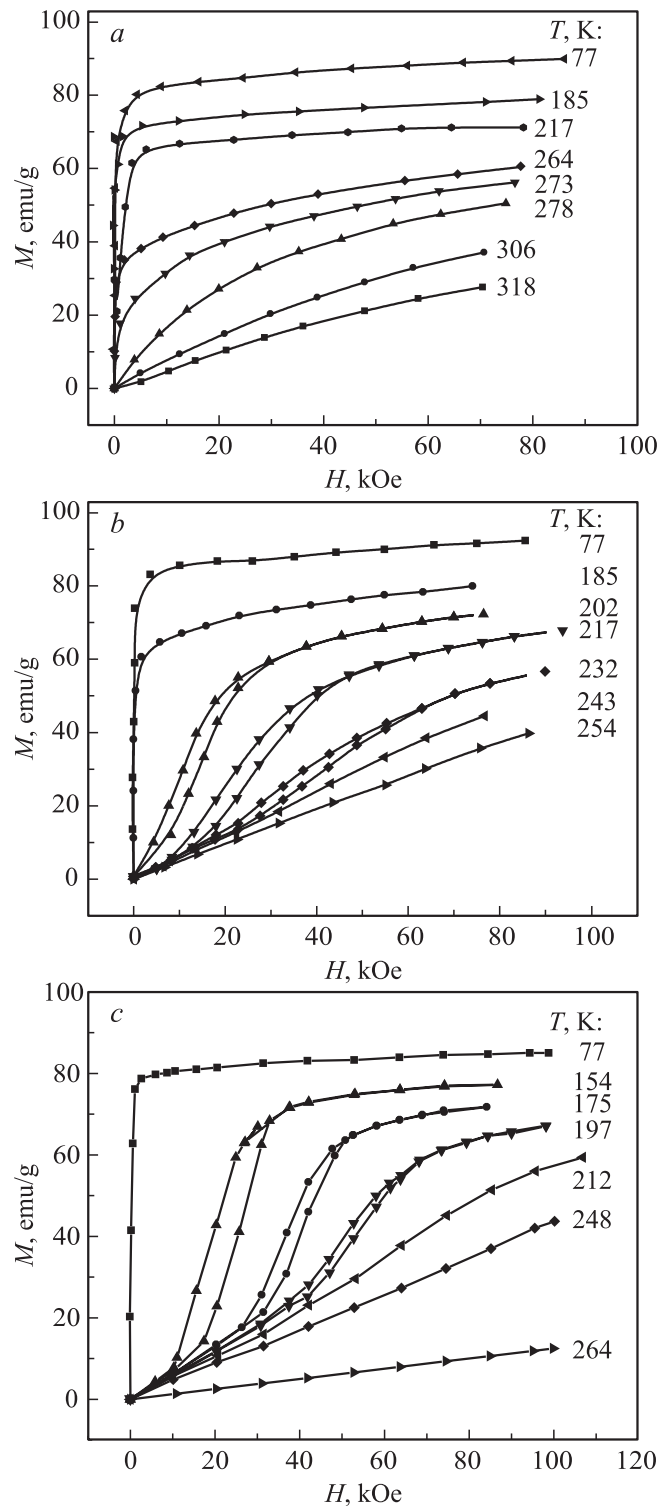


**Рис. 3.** Температурные зависимости магнитной восприимчивости  $\chi(T)$  и обратной восприимчивости  $\chi^{-1}(T)$  в  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ , измеренные в переменном поле с напряженностью 60 Ое.

может происходить также индуцирование новых ФМ-кластеров в интервале температур  $T_c < T < T^*$  сильными магнитными полями. Предполагается, что умеренное поле трансформирует высокотемпературное неоднородное состояние в образцах с  $y > 0.5$ , состоящее из ФМ-кластеров при температурах выше  $T_c$ , в однородное ФМ-состояние с хорошей проводимостью. Это может привести к обратимому, индуцированному сильным магнитным полем фазовому переходу в металлическое ферромагнитное состояние при температурах выше  $T_c$ , подобному хорошо известным метамагнитным фазовым переходам. В изотермах намагниченности, полученных для образцов с  $y > 0.5$  при температурах выше температур Кюри для соответствующих составов, в сильных полях были обнаружены дополнительные особенности, свидетельствующие о фазовых превращениях в однородное ФМ-состояние, связанных с существованием в этих образцах при температурах выше  $T_c$  фазы, подобной фазе Гриффитса.

В исходном соединении системы  $(Nd_{1-y}Sm_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  с концентрацией самария  $y = 0$  для температур  $T < T_c \sim 270$  К с увеличением напряженности измерительного поля наблюдается характерное для однородного ферромагнетика резкое увеличение намагниченности в относительно узком интервале полей  $0 \leq H \leq 6$  кОе с последующим выходом на насыщение в более сильных полях (рис. 4, *a*). Поведение полевых зависимостей  $M(H)$  для  $Nd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ , полученных в импульсных полях, в широком интервале температур хорошо согласуется с данными по намагничиванию образцов в статических полях и четко свидетельствует о существовании в этом образце однородного дальнедействующего упорядочения спинов Mn при температурах ниже  $T_c \sim 270$  К и однородного парамагнитного состояния спинов при температурах выше  $T_c$ . Этот вывод подтверждается также отсутствием изгибов и гистерезиса в изотермах  $M(T)$  для  $T > T_c$ . В образце  $(Nd_{1-y}Sm_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  с  $y = 0.6$  критическая температура  $T_c$  фазового перехода из парамагнитного в ферромагнитное состояние в статическом измерительном поле  $H = 1.5$  кОе равна 175 К. Изотерма  $M(H)$ , измеренная при 77 К, аналогична изотермам, полученным для  $Nd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в низкотемпературной ФМ-фазе, и не содержит никаких дополнительных особенностей. Изотермы для  $T = 243$  и 254 К обнаруживают почти линейный рост намагниченности с ростом напряженности измерительного поля, характерный для однородного парамагнетика (рис. 4, *b*). С ростом температуры измерений угол наклона прямых  $M(H)$  относительно оси абсцисс уменьшается. В то же время изотермы, измеренные в парамагнитной фазе для  $T = 202, 217$  и 232 К, имеют необычный вид и заслуживают особого внимания. Во многом они напоминают изотермы намагниченности, полученные в манганитах с половинным полем метамагнитных фазовых переходов первого рода антиферромагнетик–ферромагнетик. Для них характерно наличие резкого роста намагниченности

образца при критическом внешнем магнитном поле  $H_{cr}^+$ , величина которого растет с повышением температуры, а также сильный гистерезис. В образце с  $y = 0.6$  при  $T = 202$  К критическое поле перехода в ферромагнитное состояние с ростом напряженности внешнего поля



**Рис. 4.** Изотермы намагниченности  $M(H)$  образцов  $(Nd_{1-y}Sm_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в импульсных полях, измеренные в интервале температур 77–300 К.  $y$ : *a* — 0, *b* — 0.6, *c* — 1.

$H_{\text{cr}}^+ \sim 14 \text{ kOe}$ , тогда как возвращение образца в немагнитное состояние происходит при значительно меньшем поле  $H_{\text{cr}}^- \sim 11 \text{ kOe}$ .

Наиболее четко аномальное поведение кривых намагничивания в парамагнитной фазе проявляется в образце  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  с температурой перехода парамагнетик–ферромагнетик  $T_c \sim 130 \text{ K}$ . Как видно из рис. 4, с, аномальные изотермы намагниченности существуют в этом образце в широком интервале температур, больших  $T_c \sim 130 \text{ K}$ . Можно отметить, что критическое поле перехода  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  в ферромагнитное состояние значительно больше, чем в образцах с меньшим содержанием Sm, что свидетельствует о более высокой стабильности фазы GP в этом образце. Можно предположить, что в основе аномального поведения изотерм намагниченности  $M(H)$  в фазе GP системы  $(\text{Nd}_{1-y}\text{Sm}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  лежит существование в образцах с  $y > 0.5$  при температурах выше  $T_c$  короткодействующих ФМ-корреляций (кластеров), размер которых уменьшается с увеличением содержания Sm. Внешнее магнитное поле упорядочивает ориентацию магнитных моментов ФМ-кластеров, способствует их росту вплоть до перколяции с последующим фазовым переходом в однородное ферромагнитное состояние.

3.2. Система  $(\text{Sm}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ . Как показано выше, в измерительном поле  $1.5 \text{ kOe}$  исходное соединение этой системы  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  с понижением температуры испытывает скачкообразный фазовый переход в ферромагнитное состояние с критической температурой  $T_c \cong 130 \text{ K}$  с малым температурным гистерезисом, что указывает на наличие ФМ-фазового перехода первого рода, подобного исследованному в [9]. В измерительном поле  $9.7 \text{ kOe}$  температура перехода повысилась до  $140 \text{ K}$ , что свидетельствует о высокой чувствительности образца к небольшим изменениям внешнего магнитного поля. В высокотемпературной фазе  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  изотермы намагниченности  $M(T)$ , измеренные в режимах роста и уменьшения напряженности внешнего магнитного поля, демонстрировали аномальные обратимые фазовые переходы первого рода в ферромагнитное состояние, проявляющиеся в резком увеличении намагниченности в виде порогов, высота которых уменьшается с ростом температуры. Переходы происходят при критических значениях магнитных полей, растущих при увеличении температуры, и сопровождаются полевым гистерезисом. С ростом температуры измерения гистерезис размывается и аномальные кривые  $M(T)$  вырождаются в обычную линейную зависимость намагниченности от напряженности внешнего поля, типичную для парамагнетиков при температурах выше  $T^* \sim 210 \text{ K}$ . Вблизи  $210 \text{ K}$  обнаружена также аномалия температурной зависимости ас-магнитной восприимчивости в виде ступеньки, которая сопровождается изменением угла наклона отрезков прямых, соответствующих температурной зависимости  $\chi^{-1}(T)$ , что является характерным признаком существования неупорядоченной фазы GP в интервале температур  $130\text{--}210 \text{ K}$ .

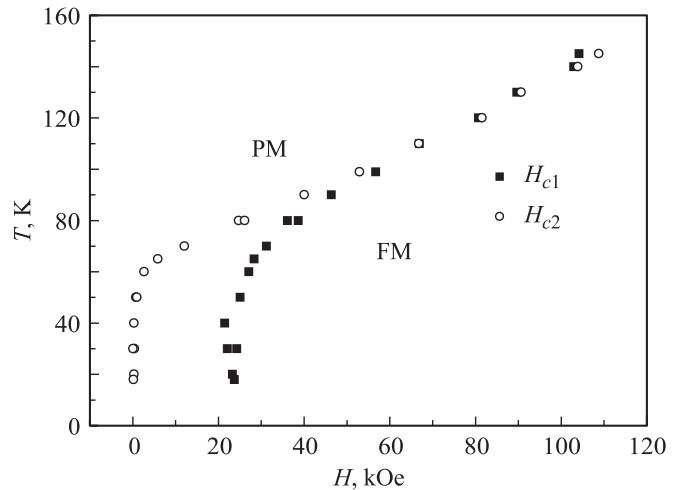
Согласно [9], можно было ожидать резкое снижение  $T_c$  до  $\sim 64 \text{ K}$  с ростом концентрации гадолиния в системе  $(\text{Sm}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  вплоть до  $y = 0.5$  с последующим переходом низкотемпературной ферромагнитной фазы в неупорядоченное спин-стеклоподобное состояние с температурой  $T_G$  „замерзания“ спинов, слабо меняющейся с ростом концентрации гадолиния. Однако, этого не произошло в исследованной в [10] и в данной работе керамике. В отличие от результатов статьи [9], полученных при изучении монокристаллов  $(\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ , низкотемпературная металлическая фаза в аналогичной системе керамических образцов полностью разрушалась уже при  $y = 0.5$ . Результаты измерения температурной зависимости магнитной восприимчивости в керамике  $(\text{Sm}_{0.5}\text{Gd}_{0.5})_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  свидетельствуют в пользу образования дальнедействующей АФМ структуры с критической температурой  $T_N \cong 48.5 \text{ K}$ . Был обнаружен резкий пик ас магнитной восприимчивости вблизи  $48.5 \text{ K}$  с небольшим температурным гистерезисом  $\sim 2 \text{ K}$ , не зависящий от частоты измерений, который сильно отличается от широкого пика  $\chi(T)$  в окрестности  $T_G \approx 45 \text{ K}$ , найденному в монокристаллах с  $y > 0.5$ . Подобный резкий пик температурной зависимости магнитной восприимчивости наблюдался ранее в различных антиферромагнетиках с Гейзенберговским, XY и Изинговским типом взаимодействия спинов в магнитных решетках с размерностью 1, 2 и 3. Обнаруженный узкий пик магнитной восприимчивости в керамике  $(\text{Sm}_{0.5}\text{Gd}_{0.5})_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  вблизи  $T_N \cong 48.5 \text{ K}$  совмещен с необычным сильным ростом восприимчивости по мере понижения температуры к нулю, характерным для суперпарамагнетика. Предполагается, что при  $4.2 \text{ K}$  реализуется смешанная магнитная фаза, состоящая из фазы с расходящейся вблизи абсолютного нуля магнитной восприимчивостью, внедренной в диэлектрическую АФМ матрицу.

Увеличение внешнего статического магнитного поля при  $4.2 \text{ K}$  в керамике  $(\text{Sm}_{0.5}\text{Gd}_{0.5})_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  привело к необратимому индуцированию ферромагнитной фазы, свойства которой не изменялись в течение длительного времени. Метамагнитный фазовый переход в упорядоченное ферромагнитное состояние осуществляется в необычно малом критическом поле  $H_{c1} \cong 25 \text{ kOe}$ , которое остается постоянным с ростом температуры до  $60 \text{ K}$ . Об устойчивости индуцированной ферромагнитной фазы в области температур  $4.2\text{--}60 \text{ K}$  свидетельствует также температурная зависимость ас-магнитной восприимчивости. Характерными особенностями полученных при  $4.2 \text{ K}$  полевых зависимостей намагниченности индуцированной ферромагнитной фазы является относительно большая ширина гистерезисной кривой  $M(H) \sim 4.4 \text{ kOe}$ , соответствующая полю коэрцитивности  $H_c \cong 2.2 \text{ kOe}$ , и сравнительно небольшая величина намагниченности насыщения  $\sim 60 \text{ emu/g}$  в поле  $10 \text{ kOe}$ , связанная, по-видимому, со скошенным состоянием спинов марганца. Температурные зависимости магнитной восприимчивости и изотермы намагничивания образцов

указывают на двухфазную природу низкотемпературного состояния керамики  $(Sm_{1-y}Gd_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ , в котором в нулевом магнитном поле доминирует диэлектрическое антиферромагнитное состояние с зарядовым/орбитальным упорядочением. Следует отметить, что изотермы намагниченности, исследованные в настоящей работе, в интервале температур 4.2–60 К, соответствующем области устойчивого существования индуцированной ферромагнитной фазы, не содержат сильных разрывов, характерных для ранее исследованных в манганитах необратимых фазовых переходов [14–19] как в статических, так и в импульсных магнитных полях. Поэтому предложенные в этих работах механизмы захвата индуцированной магнитным полем ферромагнитной фазы, по-видимому, не могут объяснить данные экспериментальные результаты.

При температурах выше 60 К поведение намагниченности твердого раствора  $(Sm_{1-y}Gd_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в сильном магнитном поле существенно меняется. Форма изотерм  $M(H)$  существенно отличается от формы аналогичных изотерм, полученных в низкотемпературной фазе с антиферромагнитным упорядочением спинов марганца. Основным отличием изотерм является отсутствие признаков разрушения дальнедействующего АФМ-упорядочения и необратимого индуцирования однородного ферромагнитного состояния при использованных нами напряженностях импульсных магнитных полей. Согласно изотерме намагниченности, измеренной при 77 К, с ростом напряженности внешнего магнитного поля до критического значения  $H_{c1}$  происходит порогообразный переход из парамагнитного в ферромагнитное состояние, аналогичный переходу из фазы, подобной фазе Гриффитса, в ферромагнитное состояние, рассмотренному выше для системы  $(Nd_{1-y}Sm_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ . Этот фазовый переход сопровождается температурным гистерезисом с критическим полем  $H_{c2} \neq 0$ , ниже которого образец возвращается в исходное смешанное состояние. Значения критических полей  $H_{c1}$  и  $H_{c2}$  практически линейно растут в интервале температур 80–150 К, при этом разность этих полей уменьшается с ростом температуры и обращается в нуль вблизи 110 К. При дальнейшем повышении температуры индуцированный полем фазовый переход имеет вид ступеньки намагниченности без температурного гистерезиса, которая линейно по температуре смещается в сторону более сильных полей и исчезает при температурах выше 150 К. При температурах выше 150 К наблюдалось только линейное увеличение намагниченности с ростом напряженности внешнего магнитного поля, характерное для обычной парамагнитной фазы.

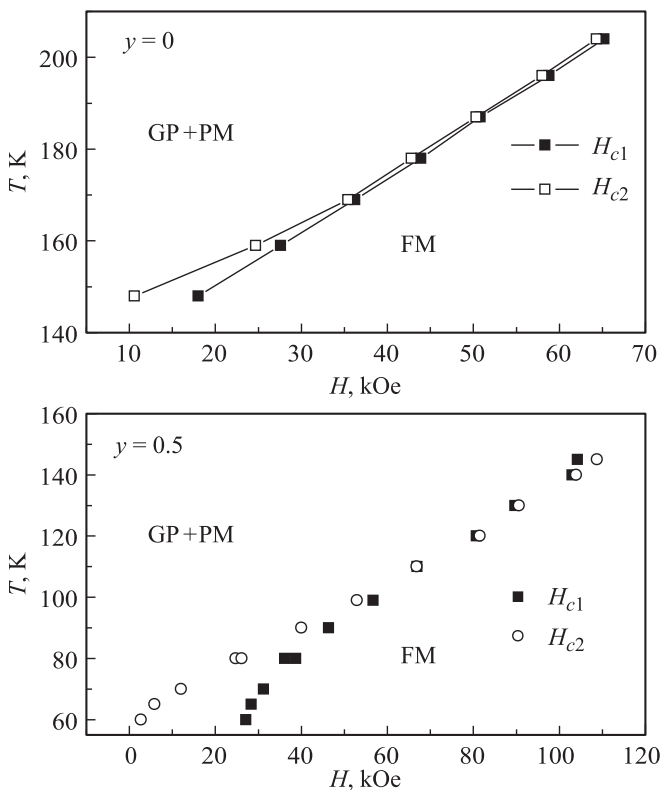
Температурные зависимости критических полей  $H_{c1}$  и  $H_{c2}$  магнитных фазовых превращений в  $(Sm_{0.5}Gd_{0.5})_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в интервале температур 4.2–150 К, представленные на рис. 5 в виде  $H$ – $T$ -фазовой диаграммы, уже обсуждались ранее в [10]. Согласно данным рис. 5, индуцированное внешним магнитным полем  $H_{c1} \cong 25$  кОе устойчивое ферромагнитное



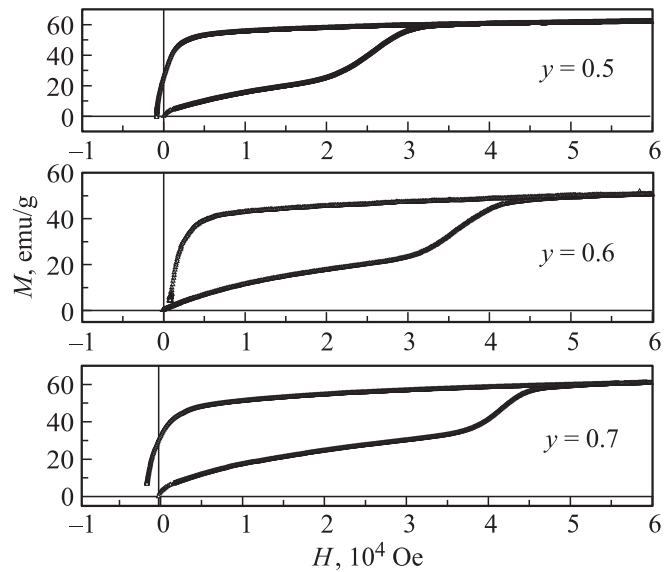
**Рис. 5.** Магнитная  $H$ – $T$ -фазовая диаграмма керамики  $(Sm_{0.5}Gd_{0.5})_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ , полученная в сильных импульсных магнитных полях.

состояние существует в низкотемпературной фазе  $(Sm_{0.5}Gd_{0.5})_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  при температурах ниже температуры упорядочения зарядов ионов  $Mn^{3+}/Mn^{4+}$   $T_{CO} \cong \cong 60$  К, что значительно превышает область существования антиферромагнитного состояния в нулевом магнитном поле. Таким образом, разрушение метастабильного состояния с зарядовым упорядочением сильным магнитным полем носит в исследованных образцах необратимый характер и сопровождается захватом в метастабильное ферромагнитное состояние. Значения критических полей  $H_{c1}$  и  $H_{c2}$  нелинейно растут в интервале температур 60–80 К с последующим линейным ростом по мере увеличения температуры до 150 К. При этом разность критических полей  $\Delta H_c = H_{c1} - H_{c2}$ , определяющая гистерезисные явления при метамагнитном фазовом переходе первого рода, быстро уменьшается с ростом температуры и обращается в нуль вблизи 110 К. Причиной гистерезиса критических полей метамагнитных фазовых переходов в манганитах с почти половинным заполнением зоны проводимости принято считать локальные деформации кристаллической решетки, тесно связанные с зарядовым и орбитальным состоянием ионов марганца. Поэтому можно предположить, что резкое падение до нуля величины гистерезиса  $\Delta H_c(T)$  критических полей метамагнитного фазового перехода при температурах выше  $T_{CO} \cong 60$  К, по-видимому, связано с разрушением с ростом температуры и исчезновением локальных корреляций орбитального порядка  $\xi_{OO}(T)$  при температурах выше  $T_{cor1} \cong 110$  К. Как было показано в [10], исчезновение признаков метамагнитного фазового перехода при температурах выше  $T_{cor2} \cong 150$  К можно объяснить исчезновением локальных корреляций зарядового порядка  $\xi_{CO}(T)$ . Полученные результаты хорошо согласуются с данными исследования температурных зависимостей интенсивностей диффузного рассеяния рентгеновских лучей и рама-

новского спектра фононов в монокристаллах с близким составом, свидетельствующими о существовании сильной антиферромагнитной короткодействующей зарядовой/орбитальной корреляции в интервале температур 65–150 К [9]. Представляет интерес сравнить температурные зависимости критических полей индуцированных фазовых превращений в соединениях  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  и  $(\text{Sm}_{0.5}\text{Gd}_{0.5})_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  в высокотемпературной фазе. Как видно из рис. 6, несмотря на внешнее сходство этих зависимостей, существует несколько существенных отличий, связанных с различной величиной среднего ионного радиуса в А-позиции. Как было показано выше, в керамике  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  ( $\langle r_A \rangle > \langle r_A \rangle_{\text{cr}}$ ) в низкотемпературной фазе в нулевом внешнем магнитном поле реализуется устойчивое металлическое ферромагнитное состояние с критической температурой  $T_c \cong 130$  К. При температурах выше  $T_c$  обнаружены обратимые переходы первого рода из неоднородного состояния, содержащего GP- и парамагнитную фазы, в ферромагнитное с ростом напряженности внешнего магнитного поля до критического значения  $H_{c1}$ , которое практически линейно растет с ростом температуры согласно рис. 6. Предполагается существование в образце в интервале температур шириной порядка 80 К фазы GP, содержащей короткодействующие ферромагнитные корреляции. Метамагнитные



**Рис. 6.** Температурные зависимости критических полей  $H_{c1}$  и  $H_{c2}$  в образцах керамики  $(\text{Sm}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  с концентрацией  $y = 0$  и  $0.5$  при температурах выше температур перехода в упорядоченное состояние  $T_c \cong 130$  К и  $T_N = 48.5$  К соответственно.

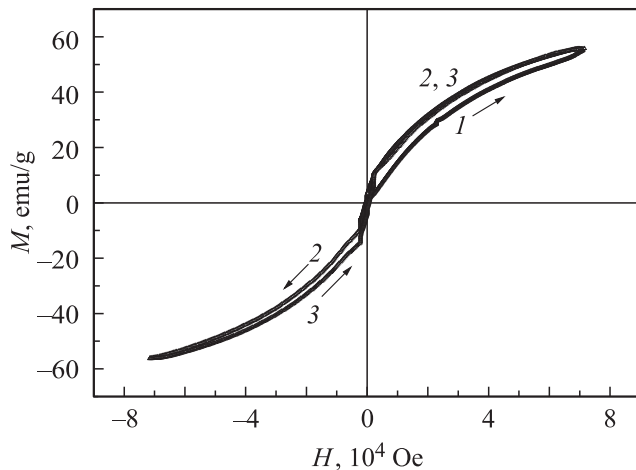


**Рис. 7.** Эволюция изотерм намагниченности образцов системы  $(\text{Sm}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  с ростом концентрации гадолиния в статических магнитных полях при температуре 4.2 К.

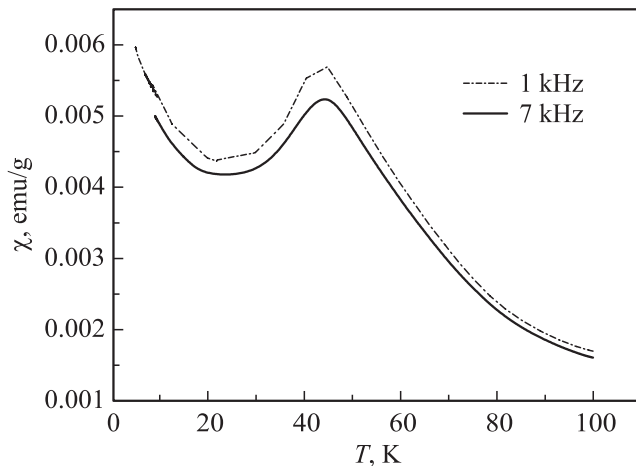
фазовые переходы в высокотемпературной фазе происходят вследствие развития и перколяции ФМ-кластеров, индуцированных внешним магнитным полем. В то же время в керамике  $(\text{Sm}_{0.5}\text{Gd}_{0.5})_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  со средним ионным радиусом  $\langle r_A \rangle \sim \langle A \rangle_{\text{cr}}$ , согласно [10], в области значительно более низких температур сосуществуют два вида дальнего порядка: упорядоченное метастабильное антиферромагнитное состояние с критической температурой  $T_N \cong 48.5$  К и метастабильное состояние с зарядовым дальним порядком с близкой температурой упорядочения  $T_{\text{CO}} \cong 60$  К. В высокотемпературной фазе, согласно данным рис. 6, наблюдается нелинейная зависимость критических полей и фазовых переходов в смешанном состоянии от температуры образца. Предполагается, что высокотемпературные метамагнитные фазовые переходы в керамике  $(\text{Sm}_{0.5}\text{Gd}_{0.5})_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  происходят вследствие разрушения кластеров с зарядовым/орбитальным упорядочением.

С целью проследить дальнейшую эволюцию магнитных свойств системы  $(\text{Sm}_{1-y}\text{Gd}_y)_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  по мере замещения редкоземельных ионов в А-позиции ионами меньшего радиуса были исследованы также индуцированные полем метамагнитные фазовые переходы в образцах с  $y = 0.6, 0.7$  и  $1.0$ . Как видно из рис. 7, с ростом  $y$  полевые зависимости намагниченности, полученные в статических полях при 4.2 К, соответствуют необратимому метамагнитному фазовому переходу первого рода с критическими полями  $H_c = 25, 36$  и  $45$  кОе для  $y = 0.5, 0.6$  и  $0.7$  соответственно. Исходя из полученной линейной зависимости критического поля от концентрации Gd можно было ожидать, что необратимый метамагнитный фазовый переход в ФМ-состояние в образце с  $y = 1$  должен произойти в критическом





**Рис. 8.** Изотермы намагниченности  $M(H)$  образца керамики  $Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  при 4.2 К, измеренные при поэтапных изменениях статического магнитного поля в интервале  $\pm 75$  кОе.



**Рис. 9.** Температурные зависимости магнитной восприимчивости  $\chi(T)$  твердого раствора  $Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ , полученные в переменном поле с напряженностью 17 Ое на частотах 1 и 7 кГц.

поле  $H_c \leq 75$  кОе. Однако, согласно изотермам намагниченности 1–3, полученным при изменении внешнего статического магнитного поля в интервале  $\pm 75$  кОе при 4.2 К (рис. 8), в керамике  $Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ , по-видимому, реализуется неоднородное спин-стеклоное состояние, свойства которого сильно зависят от предыстории измерения намагниченности. Обращают на себя внимание разрывы петли гистерезиса намагниченности вблизи нулевого внешнего магнитного поля, что свидетельствует о неоднородности основного состояния  $Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ . Характерной особенностью представленных на рисунке изотерм является отсутствие необратимого метамагнитного фазового перехода первого рода в ФМ-состояние, обнаруженного в образцах с  $y = 0.5, 0.6, 0.7$ .

Предположение о существовании в низкотемпературной фазе керамики  $Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  неоднородного спин-стеклоного состояния, подтверждается температурной зависимостью ас-магнитной восприимчивости (рис. 9). Такое изменение магнитной восприимчивости с температурой обуславливается суперпозицией зависящего от частоты измерения колоколообразного пика вблизи температуры  $T_G \cong 42$  К, характерного для спин-стеклоного состояния, и подобного суперпарамагнитному ходу магнитной восприимчивости вблизи температуры абсолютного нуля. Было установлено, что с ростом концентрации Gd в образцах происходит рост магнитной восприимчивости образца вблизи 4.2 К, смещение пика  $\chi(T)$  в сторону более низких температур, относительное уменьшение величины пика восприимчивости вблизи  $T_G \cong 42$  К. Таким образом, поведение ас-магнитной восприимчивости в керамике  $Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  существенно отличается от ее поведения в  $(Sm_{0.5}Gd_{0.5})_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ , рассмотренного ранее в [10]. Это отличие заключается в следующем: вместо острого пика  $\chi(T)$  вблизи критической температуры перехода в упорядоченное АФМ-состояние  $T_N \cong 48.5$  К, не зависящего от частоты измерения, в керамике  $Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  формируется колоколообразный пик восприимчивости вблизи  $T_G \cong 42$  К с небольшой частотной зависимостью, характерной для фазового перехода из парамагнитного в спин-стеклоное состояние [9]. Этот переход сопровождается при дальнейшем понижении температуры резким ростом магнитной восприимчивости вблизи абсолютного нуля температур. Суперпозиция двух различных по своей природе вкладов в магнитную восприимчивость свидетельствует о неоднородной природе низкотемпературного состояния в керамике  $Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в нулевом внешнем магнитном поле с преимущественной стабилизацией спин-стеклоного состояния в окрестности температуры „замерзания“ спинов  $T_G \cong 42$  К. Согласно данным рис. 9, ас-магнитная восприимчивость интенсивно растет с понижением температуры образца вблизи 4.2 К и, очевидно, расходится вблизи абсолютного нуля температур, что характерно для квантовых фазовых переходов в низкоразмерных квантовых гейзенберговских антиферромагнетиках со структурным беспорядком [20–22]. В этой фазе низкотемпературная однородная восприимчивость расходится алгебраически с неуниверсальным показателем степени. Такая сингулярность вблизи абсолютного нуля температур характерна для фазы с квантовым магнитным беспорядком, получившей название квантовой фазы Гриффитса. Магнитные свойства квантовой фазы Гриффитса определяются в основном квантовыми флуктуациями и являлись в последнее время объектом интенсивного исследования. Следует отметить, что подобная сингулярность вблизи абсолютного нуля температур отсутствует в исходном соединении системы  $(Sm_{1-y}Gd_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  ( $y = 0$ ), но наблюдается для керамики  $(Sm_{0.5}Gd_{0.5})_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  ( $y = 0.5$ ). Можно предположить, что основным состоянием образцов керамики  $(Sm_{1-y}Gd_y)_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  для  $y \geq 0.5$

является смешанное состояние, в котором в области низких температур присутствует фаза с квантовыми магнитными флуктуациями — квантовая фаза Гриффитса, удельный вес которой относительно спин-стекольной фазы растет с ростом концентрации гадолия. С ростом  $u$  происходит постепенное сближение температур двух фазовых переходов, приводящее к образованию необычного состояния вблизи нуля температур. Это состояние подобно хорошо известному в литературе необычному состоянию квантовой критической точки, в котором доминируют квантовые флуктуации нескольких параметров порядка. В эксперименте двухфазное низкотемпературное квантовое состояние проявляется в виде пика магнитной восприимчивости вблизи  $\sim 40$  К и ее расходимости вблизи абсолютного нуля температур, а также в необычных полевых зависимостях намагниченности. Подобное смешанное состояние было открыто недавно в манганитах  $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_3$  вблизи фазового перехода металл–диэлектрик [23,24].

#### 4. Заключение

Таким образом, экспериментально установлено наличие нескольких характерных признаков сильных флуктуаций зарядовых, орбитальных и магнитных параметров порядка вблизи фазового перехода металл–диэлектрик в манганитах  $R_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  с почти половинным заполнением зоны проводимости, вызванного последовательным изовалентным замещением редкоземельных ионов относительно большого радиуса ( $\text{Nd}^{3+}$ ,  $r_{\text{Nd}} \approx 1.16$  Å) ионами меньшего радиуса ( $\text{Sm}^{3+}$ ,  $r_{\text{Sm}} \approx 1.13$  Å,  $\text{Gd}^{3+}$ ,  $r_{\text{Gd}} \approx 1.11$  Å). В настоящей работе обнаружено резкое снижение критической температуры перехода из парамагнитного состояния в ферромагнитное; появление характерных признаков фазового перехода первого рода в ФМ-фазе вблизи  $T_c$ ; сильная чувствительность магнитных свойств к величине и характеру изменения измерительного магнитного поля; концентрационный фазовый переход от металлического ферромагнитного состояния в низкотемпературной фазе к диэлектрическому антиферромагнитному состоянию вблизи критической величины среднего ионного радиуса  $\langle r_A \rangle_{\text{cr}} \sim 1.32$  Å в А-позиции перовскитоподобной матрицы; появление высокотемпературной и низкотемпературной (квантовой) фаз, подобных фазе Гриффитса. Предполагается, что возникающие в образцах изменения магнитных и электронных свойств вызваны появлением и ростом сильных зарядовых/орбитальных флуктуаций параметров порядка (в том числе и квантовых) вблизи фазового перехода из металлического в диэлектрическое состояние.

Авторы благодарны В.И. Валькову, В.И. Каменеву, В.П. Дьяконову, Б.М. Тодрису, С.В. Васильеву, С.Л. Сидорову, З.Ф. Кравченко за оказанную помощь.

#### Список литературы

- [1] Y. Tokura. Rep. Prog. Phys. **69**, 797 (2006).
- [2] D. Akahoshi, M. Uchida, Y. Tomioka T. Arima, Y. Matsui, Y. Tokura. Phys. Rev. Lett. **90**, 177 203 (2003).
- [3] S. Murakami, N. Nagaosa. Phys. Rev. Lett. **90**, 197 201 (2003).
- [4] H. Aliaga, D. Magnoux, A. Moreo, D. Poilblank, S. Yunoki, E. Dagotto. Phys. Rev. B **68**, 104 405 (2003).
- [5] J. Burgy, M. Mayr, V. Martin-Mayor, A. Moreo, E. Dagotto. Phys. Rev. Lett. **87**, 277 202 (2001).
- [6] J. Burgy, A. Moreo, E. Dagotto. Phys. Rev. Lett. **92**, 097 202 (2004).
- [7] K. Pradhan, A. Mukherjee, P. Majumdar. Phys. Rev. Lett. **99**, 147 206 (2007).
- [8] Y. Tomioka, Y. Tokura. Phys. Rev. B **66**, 104 416 (2002).
- [9] Y. Tomioka, Y. Okimoto, J.H. Jung, R. Kumai, Y. Tokura. Phys. Rev. B **68**, 094 417 (2003).
- [10] Ф.Н. Буханько. ФТТ **54**, 1128 (2012).
- [11] R.B. Griffiths. Phys. Rev. Lett. **23**, 17 (1969).
- [12] M.B. Salamon, P. Lin, S.H. Chun. Phys. Rev. Lett. **88**, 197 203 (2002).
- [13] C. Magen, P.A. Algarabel, L. Morellon, J.P. Arújo, C. Ritter, M.R. Ibarra, A.M. Pereira, J.B. Sousa. Phys. Rev. Lett. **96**, 167 201 (2006).
- [14] A. Sundaresan, A. Maignan, B. Raveau. Phys. Rev. B **55**, 5596 (1997).
- [15] J. Dho, N.H. Hur. Phys. Rev. B **67**, 214 414 (2003).
- [16] A.V. Kalinov, L.M. Fisher, I.F. Voloshin, N.A. Babushkina, D.I. Khomskii, T.T.M. Palstra. J. Magn. Magn. Mater. **300**, 399 (2006).
- [17] D.S. Rana. S.K. Malic. Phys. Rev. B **74**, 052 407 (2006).
- [18] Y. Li, J. Miao, Y. Sui, Q. Cheng, W. Zhang, X. Wang, W. Su. J. Alloys and Comp. **458**, 11 (2008).
- [19] A.V. Kalinov, L.M. Fisher, I.F. Voloshin, N.A. Babushkina, C. Martin, A. Mfignan. J. Phys.: Conf. Ser. **150**, 042 081 (2009).
- [20] T. Vojta, J. Schmalian. Phys. Rev. B **72**, 045 438 (2005).
- [21] A.A. Zvyagin. Phys. Rev. B **72**, 064 419 (2005).
- [22] A.W. Sandvik. Phys. Rev. Lett. **96**, 207 201 (2006).
- [23] J.L. Alonso, L.A. Fernandez, F. Guinea, V. Laliena, V. Martin-Mayor. Phys. Rev. B **66**, 104 430 (2002).
- [24] J.M. De Teresa, P.A. Algarabel, C. Ritter, J. Blasco, M.R. Ibarra, L. Morellon, J.I. Espeso, J.C. Gomez-Sal. Phys. Rev. Lett. **94**, 207 205 (2005).