

## Магнитосопротивление и переход диэлектрик – металл в $\text{LaCoO}_3$ , индуцированный сильным магнитным полем

С. Г. Овчинников<sup>+\*∇</sup>, Ю. С. Орлов<sup>+1)</sup>

<sup>+</sup>Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отд. РАН, 660036 Красноярск, Россия

<sup>\*</sup>Сибирский федеральный университет, 660041 Красноярск, Россия

<sup>∇</sup>Сибирский аэрокосмический университет, 660014 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 24 сентября 2010 г.

Теоретически исследована перестройка зонной структуры  $\text{LaCoO}_3$  во внешнем магнитном поле. Поле меньше критического  $B_C \approx 65$  Тл уменьшает диэлектрическую щель в  $\text{LaCoO}_3$  и приводит к отрицательному магнитосопротивлению, достигающему максимума при  $T \simeq 300 \div 500$  К. Критическое поле обусловлено кроссовером высоко- и низкоспиновых термов иона  $\text{Co}^{3+}$ . Спиновый кроссовер приводит к переходу диэлектрик – металл с ростом магнитного поля.

В поведении  $\text{LaCoO}_3$  с ростом температуры можно выделить три области: немагнитного диэлектрика, парамагнитного диэлектрика и парамагнитного металла [1, 2]. Переходы между ними плавные и размытые, это не фазовые переходы в классическом смысле, а кроссоверы. Недавно в работе [3] был предложен механизм перехода диэлектрик – металл, наблюдаемого в  $\text{LaCoO}_3$  в области температуры от 500 до 600 К. Для этого методом LDA+GTV [4], представляющим реализацию идей Хаббарда для многоэлектронных и многоорбитальных систем, была рассчитана электронная структура  $\text{LaCoO}_3$  при конечных температурах. Описание электрона в сильно коррелированной системе в виде линейной комбинации хаббардовских фермионов – квазичастичных возбуждений между различными многоэлектронными состояниями (рис.1) позволило рассчитать и проанализировать поведение зонной структуры. В энергетическом спектре  $\text{LaCoO}_3$  были выявлены внутрищелевые состояния, обусловленные переходами из возбужденного высокоспинового состояния конфигурации  $d^6$  в высокоспиновое основное состояние конфигурации  $d^5$  (пунктирные линии на рис.1), уменьшающее ширину диэлектрической щели  $E_g$  при повышении температуры. Спектральный вес квазичастичных возбуждений определяется заселенностью многоэлектронных состояний. Первый возбужденный уровень высокоспинового терма конфигурации  $d^6$  отделен небольшой спиновой щелью  $\Delta_{s-t} \approx 150$  К от низкоспинового  $^1A_1$  [5–7] (рис.1). Поэтому с ростом  $T$  растут и магнитная восприимчивость, и ширина зоны внутрищелевых состояний по мере термическо-

го заселения возбужденных уровней. В настоящей работе мы показываем, что внешнее магнитное поле уменьшает спиновую щель и индуцирует переход  $\text{LaCoO}_3$  в металлическое состояние.

Под воздействием внешнего магнитного поля трехкратно вырожденный уровень  $\tilde{J} = 1$  и пятикратно вырожденный уровень  $\tilde{J} = 2$  терма  $^5T_2$  конфигурации  $d^6$  расщепятся, как показано на рис.2. При критическом значении магнитного поля  $B_C \approx 65$  Тл [5] происходит кроссовер между основным низкоспиновым орбитальным синглетом  $^1A_1$  и подуровнем с эффективным угловым моментом  $\tilde{J} = 1$  и проекцией  $m_{\tilde{J}=1} = 1$ :

$$\Delta_{s-t}(B) = \Delta_{s-t}(0) - g\mu B,$$

$\mu$  – магнетон Бора,  $g = 3, 4$  – фактор Ланде [5–7]. Пересечение уровней индуцирует магнитный переход, обнаруженный авторами [8] при измерении намагниченности  $\text{LaCoO}_3$ . Величина критического поля соответствует точке перехода. Расщепление уровней в магнитном поле приведет к перераспределению их термической заселенности и, следовательно, к перераспределению спектрального веса квазичастичных возбуждений, образованных переходами из состояний с различной проекцией углового момента  $m_{\tilde{J}=1} = 0, \pm 1$  и  $m_{\tilde{J}=2} = 0, \pm 1, \pm 2$ . Магнитное поле приводит к снятию вырождения многоэлектронных состояний, поэтому при расчете в схеме GTV расщепление уровней учитывается для всех рассматриваемых  $d^{n-1}$ ,  $d^n$  и  $d^{n+1}$  конфигураций. В отличие от внешнего или химического давления магнитное поле приводит к уменьшению энергии перехода синглет – триплет и увеличивает скорость активации внутрищелевых состояний в зонном спектре с ростом температуры.

<sup>1)</sup> e-mail: jso.krasn@mail.ru

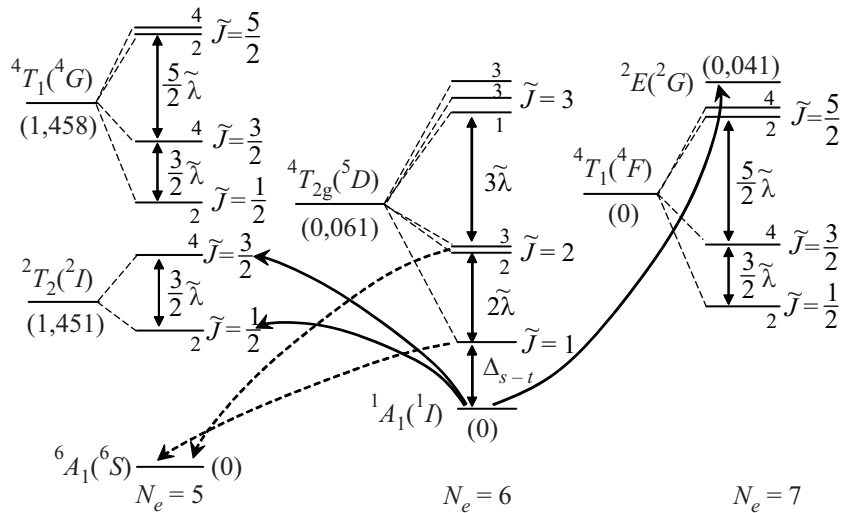


Рис.1. Набор низкоэнергетических термов для  $d^{N_e}$ ,  $N_e = 5, 6, 7$  электронных конфигураций в кристаллическом поле. При  $T = 0$  К заселен только основной низкоспиновый синглет  $^1A_1$  ( $N_e = 6$ ), фермиевские возбуждения, формирующие дно зоны проводимости и потолок валентной зоны, обозначены сплошными линиями. Пунктирными линиями отмечены переходы, ответственные за формирование внутрищелевых состояний с ростом температуры. Их спектральный вес определяется заселенностью возбужденного высокоспинового состояния конфигурации  $d^6$ . В скобках указаны величины энергий термов относительно нижнего для каждой конфигурации в единицах электрон-вольт, при этом для каждого из трех подпространств гильбертова пространства выбрано свое начало отсчета энергии

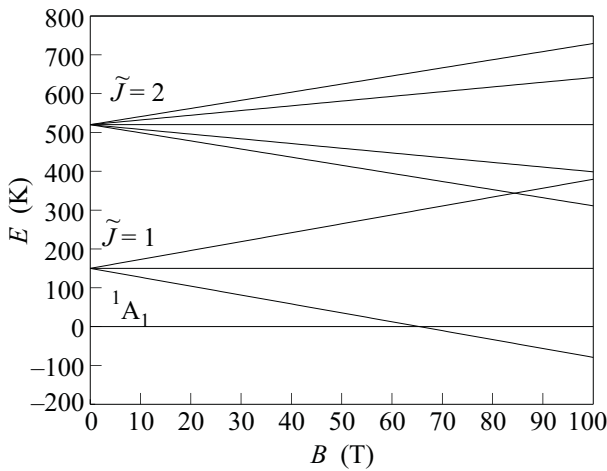


Рис.2. Энергия низко лежащих состояний иона  $Co^{3+}$  в магнитном поле

Особый интерес представляет переход диэлектрик – металл с изменением магнитного поля для сколь угодно малых температур. При температуре  $T = 0$  К и магнитном поле меньше критического значения  $B < B_C$  заселен только основной терм – низкоспиновый синглет  $^1A_1$ . Зонная структура, образованная переходами для валентной зоны  $d^6 \ ^1A_1 \rightarrow d^5 \ ^2T_2 \ \tilde{J} = 1/2, \tilde{J} = 3/2$  и  $d^6 \ ^1A_1 \rightarrow d^7 \ ^2E$  для зоны проводимости (сплошные линии на рис.1), имеет диэлектрическую щель (рис.3а) [3]. Однако при  $B > B_C$  основным становится высокоспиновое со-

стояние  $|d^6 \ ^5T_2 \ \tilde{J} = 1, m_{\tilde{J}=1} = 1\rangle$  (рис.2). В результате меняется схема формирования хаббардовских фермионов. Квазичастичные переходы  $d^6 \ ^5T_2 \ \tilde{J} = 1, m_{\tilde{J}=1} = 1 \rightarrow d^7 \ ^4T_1 \ \tilde{J} = 1/2, \tilde{J} = 3/2, \tilde{J} = 5/2$  и аналогичный терм  $d^5 \ (^4T_1)$  формируют зону проводимости и валентную зону. Переходы  $d^6 \ ^5T_2 \ \tilde{J} = 1, m_{\tilde{J}=1} = 1 \rightarrow d^5 \ ^6A_1$ , формирующие внутрищелевые состояния, имеют наибольший спектральный вес, а зонная структура имеет металлический тип (рис.3б). Щель схлопывается в точке Г. Следует отметить, что при  $T = 0$  переход по полю является квантовым фазовым переходом Лифшица [9]. Плотность состояний на уровне Ферми и параметр Зоммерфельда  $\gamma = C_e/T$  (где  $C_e$  – электронная теплоемкость) имеют особенность  $\sim (B - B_C)^{1/2}$ . Этот переход характеризуется топологическим параметром порядка [10].

При конечных температурах в интервале  $kT \sim |B - B_C|$  заселен как низкоспиновый  $^1A_1$ , так и высокоспиновый  $^5T_2$  термы конфигурации  $d^6$ . В результате вклад внутрищелевых состояний в зонную структуру проявляется уже в полях  $B < B_C$ , и переход размывается. Поэтому при конечной температуре вместо фазового перехода имеет место плавный кроссовер.

На рис.4а приведена температурная зависимость диэлектрической щели  $E_g$  для различных значений магнитного поля  $B$ . Видно, что увеличение темпера-

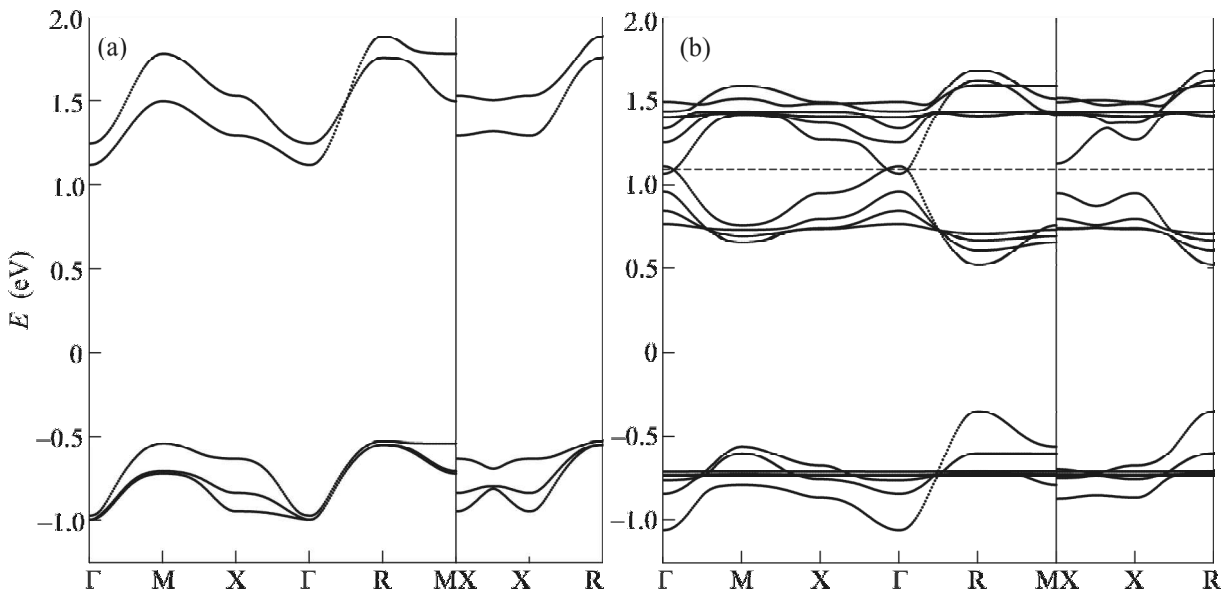


Рис.3. Квазичастичный спектр при  $T = 0$  К и магнитном поле (а)  $B < B_C$  и (б)  $B > B_C$ . Пунктирной линией показано положение химического потенциала

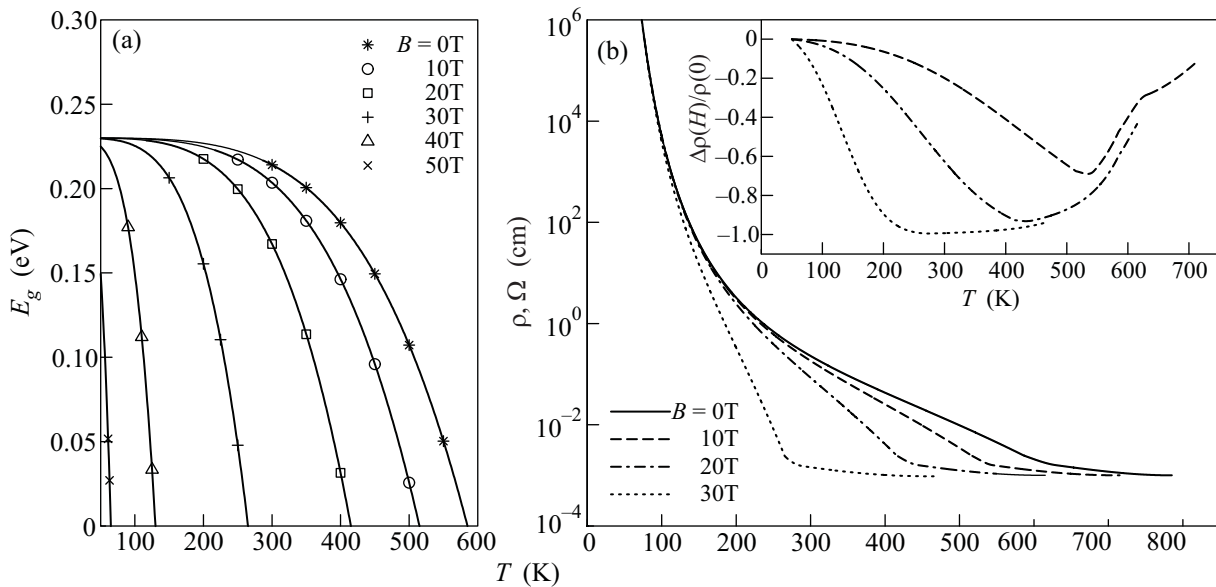


Рис.4. Влияние магнитного поля на температурные зависимости диэлектрической щели (а) и сопротивления (б). На врезке показано магнитосопротивление  $\Delta\rho/\rho = (\rho(B) - \rho(0))/\rho(0)$  для тех же значений магнитного поля

туры и магнитного поля способствует уменьшению  $E_g$ . Характерная температура перехода  $T_{IMT}$  (температура, при которой  $E_g$  обращается в нуль) из состояния с диэлектрическими в состояние с металлическими свойствами уменьшается при наличии магнитного поля.

Следуя рассуждениям, сделанным в работе [3], мы получили (рис.4б) в диэлектрической области  $B < B_C$  температурную зависимость электрического сопротивления для различных значений магнитного

поля. На врезке рис.4б показана температурная зависимость магнитосопротивления  $(\rho(B) - \rho(0))/\rho(0)$ , величина которого отрицательна и достигает по модулю максимального значения  $\sim 100\%$  в диапазоне  $300 \div 500$  К в умеренных полях. При магнитном поле  $B$ , равном 30 Тл, минимум магнитосопротивления находится в области комнатных значений температуры.

Для среднего значения квадрата углового момента можно записать выражение вида [3]

$$\begin{aligned} \langle \hat{J}^2 \rangle &= \sum_{pq} \langle p | \hat{J}^2 | q \rangle \langle X^{pq} \rangle = \\ &= \sum_N \sum_{p(N)} \langle p(N) | \hat{J}^2 | p(N) \rangle \langle X^{p(N)p(N)} \rangle, \end{aligned}$$

где сумма по  $N$  есть сумма по секторам гильбертова пространства ( $N = 5, 6, 7$ ),  $|p\rangle$  и  $|q\rangle$  есть собственные состояния оператора  $\hat{J}^2$  (рис.1):  $\hat{J}^2 |p\rangle = J(J+1) |p\rangle$ ,  $X^{pq}$  – X-операторы Хаббарда, построенные на состояниях  $|p\rangle$  и  $|q\rangle$ .

В качестве меры среднего значения оператора углового момента возьмем корень квадратный из среднего значения квадрата углового момента:

$$J_{av} = \sqrt{\langle \hat{J}^2 \rangle},$$

а поскольку средние значения  $\langle X^{pp} \rangle$  зависят от температуры и магнитного поля, то и  $J_{av}$  есть функция температуры и магнитного поля (рис.5).

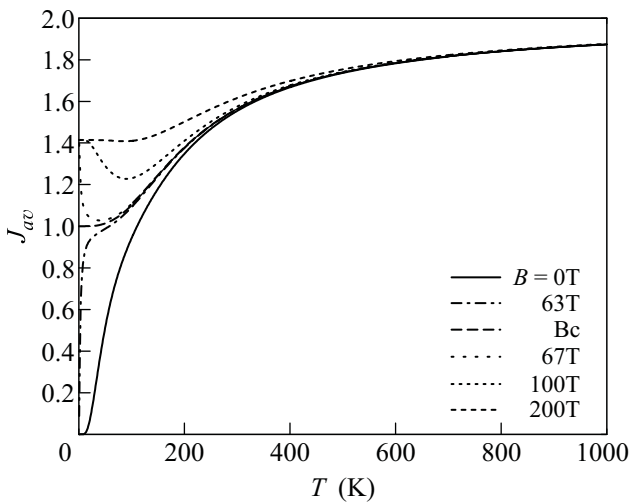


Рис.5. Зависимость среднего значения углового момента от температуры для различных значений магнитного поля  $B$ . Переход из немагнитного низкоспинового состояния при  $T \approx 0$  К в парамагнитное состояние с ростом температуры. При температуре спинового перехода  $T \sim 100$  К  $J_{av} \approx 1$

При довольно низких значениях температуры и магнитном поле, равном нулю (сплошная линия на рис.5), среднее значение углового момента близко к нулю, что соответствует немагнитному состоянию  $\text{LaCoO}_3$ . Ожидаемое для высокоспинового состояния значение  $J_{av} \approx 2$  достигается только при  $T \approx 1000$  К. При температуре, равной 100 К, среднее значение углового момента близко к единице. По нашему мнению, это может быть причиной широко распространенной неправильной точки зрения об определяющем

вкладе промежуточнospинового состояния в спиновый переход при температуре 100 К в  $\text{LaCoO}_3$  [11–13].

Поведение  $J_{av}$  с ростом магнитного поля для начала лучше рассмотреть при  $T = 0$ . Средние значения  $\langle X^{p(N)p(N)} \rangle$  пропорциональны термической заселенности состояний  $|p(N)\rangle$ . В случае без допирования ненулевой вклад имеют средние значения для  $N = 6$ , поэтому при  $B < B_C$   $J_{av} = 0$ . В точке кроссовера при  $B = B_C$  с вероятностью 1/2 заселены немагнитное,  $^1A_1$ , и магнитное высокоспиновое состояния,  $J_{av} = 1$ , а при  $B > B_C$   $J_{av} = \sqrt{2}$ , поскольку основным является уже высокоспиновое состояние  $|\tilde{J} = 1, m_{\tilde{J}=1} = 1\rangle$ . С ростом температуры  $J_{av}$  в первом случае сначала стремится к единице при  $T \approx 100$  К (как и в случае без поля) и к  $J_{av} = 2$  при  $T \approx 1000$  К. При  $B > B_C$  первым термически возбужденным является немагнитное состояние  $^1A_1$ , поэтому в температурной зависимости наблюдается минимум, постепенно уменьшающийся с ростом магнитного поля, и дальнейший рост.

В заключение отметим, что зависимость многоэлектронных термов иона  $\text{Co}^{3+}$  от магнитного поля приводит к спиновому кроссоверу при  $B = B_C \approx 65$  Тл. В полях  $B < B_C$  уменьшение спиновой щели с полем приводит к большому ( $\sim 100\%$ ) отрицательному магнитосопротивлению. В полях  $B > B_C$  имеет место металлическое состояние  $\text{LaCoO}_3$ . Все эти предсказания теории доступны экспериментальной проверке, поскольку критическое поле 65 Тл достижимо в настоящее время.

Работа выполнена при финансовой поддержке Программы ОФН РАН №2.3, интеграционного проекта СО РАН – УрО РАН № 40, ФЦП “КадрЫ” ГК №П891, грантов Российского фонда фундаментальных исследований #,09-02-00171 и # 10-02-00251 и Некоммерческого Фонда “Династия”.

1. M. Tachibana, T. Yoshida, H. Kawaji et al., Phys. Rev. B **77**, 094402 (2008).
2. J. Baier, S. Jodlauk, M. Kriener et al., Phys. Rev. B **71**, 014443 (2005).
3. С. Г. Овчинников, Ю. С. Орлов, И. А. Некрасов, З. В. Пчелкина, ЖЭТФ **138**, вып. 6, в печати (2010).
4. M. M. Korshunov, V. A. Gavrichkov, S. G. Ovchinnikov et al., Phys. Rev. B **72**, 165104 (2005).
5. S. Noguchi, S. Kawamata, K. Okuda et al., Phys. Rev. B **66**, 094404 (2002).
6. M. J. R. Hoch, S. Nellutla, J. van Tol et al., Phys. Rev. B **79**, 214421 (2009).
7. Z. Ropka and R. J. Radwanski, Phys. Rev. B **67**, 172401 (2003).

8. K. Sato, A. Matsuo, K. Kindo et al., J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 093702 (2009).
9. И. М. Лифшиц, ЖЭТФ **38**, 1569 (1960).
10. G. Volovik, *Quantum phase transitions from topology in momentum space* in *Quantum Analogues: From Phase Transitions to Black Holes and Cosmology*, Eds. W. G. Unruh and R. Schutzhold, Springer 2007, vol. 718 of “Lecture Notes in Physics”, pp. 31–73.
11. М. А. Коротин, С. Ю. Езхов, И. В. Соловьев et al., Phys. Rev. B **54**, 5309 (1996).
12. K. Asai, A. Yoneda, O. Yokokura et al., J. Phys. Soc. Jpn. **67**, 290 (1998).
13. T. Saitoh, T. Mizokawa, A. Fujimori et al., Phys. Rev. B **55**, 4257 (1997).