

## Исследование гексагональных манганитов $\text{HoMnO}_3$ и $\text{YMnO}_3$ с помощью мюонного метода

С. Г. Барсов, С. И. Воробьев<sup>1)</sup>, В. П. Коптев, Е. Н. Комаров, С. А. Котов, С. М. Микиртычьянц, Г. В. Щербаков,  
А. Е. Пестун<sup>+</sup>, Я. М. Муковский<sup>+</sup>

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова РАН  
188300 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

<sup>+</sup>Московский государственный институт стали и сплавов, 119049 Москва, Россия

Поступила в редакцию 21 мая 2007 г.

С помощью мюонного метода ( $\mu\text{SR}$ -метода) проведено исследование магнитных свойств мультиферроиков  $\text{HoMnO}_3$  и  $\text{YMnO}_3$ . Изучение зависимости скорости динамической релаксации  $\lambda$  и характеристик распределения локальных статических полей позволило уточнить фазовые состояния исследуемых образцов.

PACS: 75.20.Hr, 75.30.Et, 75.47.Np, 75.50.Gg, 76.75.+i

В последние несколько лет наблюдается всплеск интереса к мультиферроикам, веществам, в которых сосуществуют магнитное и электрическое упорядочения [1–3]. С одной стороны, создание на единой материальной платформе устройств, преобразующих информацию в форме намагниченности в электрическое напряжение и обратно, является весьма привлекательным решением насущных задач сенсорной техники, магнитной памяти и микроэлектроники, в частности спинтроники, стремящейся соединить достоинства энергонезависимой магнитной памяти и быстродействующих электрических систем обработки информации. С другой стороны, опыт, накопленный с момента обнаружения первых мультиферроиков (начало 60-х годов XX века), позволил, наконец, создавать материалы в обычных условиях, демонстрирующих сильные магнитоэлектрические свойства. Вот почему сейчас говорят о настоящем “ренессансе” магнитоэлектрической (МЭ) тематики, выражающемся в появлении секций, посвященных мультиферроикам, на симпозиумах по магнетизму, проведении специальных конференций и экспоненциальном росте публикаций на эту тему.

Манганиты  $\text{RMnO}_3$  проявляют большое разнообразие физических свойств в зависимости от редкоземельного элемента R. Соединения с большим ионным радиусом элемента R (La, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd и Tb) кристаллизуются в орторомбической структуре с пространственной группой  $Pnma$  [4]. В соединениях с меньшим ионным радиусом элемента R (Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y, Sc и In) наблюдается гекса-

гональная кристаллическая структура с пространственной группой  $P6_3cm$  [5]. Гексагональные манганиты принадлежат к классу ферроэлектромангнетиков, в которых температура перехода в ферроэлектрическое состояние  $T_C \sim 600\text{--}1000$  К намного выше температуры антиферромагнитного (АФМ) упорядочения  $T_N \sim 70\text{--}130$  К [6].

Настоящая работа посвящена исследованию локальных магнитных полей и их распределения в мультиферроиках  $\text{HoMnO}_3$  и  $\text{YMnO}_3$  с помощью мюонного метода исследования вещества ( $\mu\text{SR}$ -метод). Образцы были получены методом твердофазного синтеза. Измерения выполнены на мюонном канале синхротронного ПИЯФ РАН с помощью  $\mu\text{SR}$ -установки [7].

В эксперименте измерялись временные распределения позитронов  $N_e(t)$ , образовавшихся при распаде  $\mu^+$ -мезона ( $\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu$ ) и вылетевших в направлении исходной мюонной поляризации во временном окне  $\Delta t \sim 4.5 \cdot \tau_\mu$  после момента остановки каждого мюона в образце, где  $\tau_\mu$  – время жизни мюона. Временное распределение позитронов описывается выражением

$$N_e(t) = [N_0 \cdot \exp(-t/\tau_\mu)] \cdot [1 + a_s \cdot G_s(t) + a_b \cdot G_b(t)] + \Phi, \quad (1)$$

где  $N_0$  – нормировочная константа или, иными словами, число зарегистрированных позитронов;  $\tau_\mu \approx 2.19711 \cdot 10^{-6}$  с – время жизни мюона;  $a_s$ ,  $a_b$  – начальная асимметрия распада мюонов, остановившихся в образце ( $a_s$ ), и ее фоновая компонента ( $a_b$ ) от мюонов, остановившихся во входных окнах криостата и задающем счетчике детектора мюонов;  $G_s(t)$ ,  $G_b(t)$  – функции релаксации поляризации для мюонов, оста-

<sup>1)</sup>e-mail: vsiloo@pnpi.spb.ru

новившихся в образце и фоновых источниках;  $\Phi$  – фон случайных совпадений.

При анализе экспериментальных данных используют предположение о факторизации функции релаксации:

$$G_s(t) = G_d(t) \cdot G_{st}(t), \quad (2)$$

где  $G_d(t)$  описывает релаксацию, обусловленную динамическими эффектами, а  $G_{st}(t)$  – функция релаксации в статических полях. При изучении динамических явлений, обуславливающих релаксацию спина мюона, функция релаксации задается зависимостью

$$G_d(t) = \exp(-\lambda \cdot t), \quad (3)$$

где  $\lambda$  – скорость динамической релаксации.

На рис.1 демонстрируется зависимость скорости релаксации поляризации остановившихся мюонов в

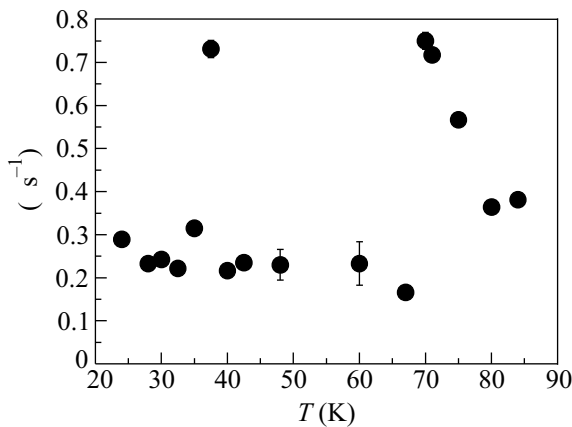


Рис.1. Скорость релаксации поляризации мюонов, остановившихся в образце HoMnO<sub>3</sub> в нулевом магнитном поле

образце HoMnO<sub>3</sub> от температуры ( $\lambda$ ). Видим два пика (76 К и 40 К), которые соответствуют двум фазовым переходам, первый ( $T = 76$  К) – переход из парамагнитного состояния в состояние антиферромагнитного упорядочения. Второй переход ( $T = 40$  К) связан с разворотом спинов Mn на 90° (спин-ротационный переход). Такое утверждение хорошо согласуется с результатами, полученными другими методами [8, 9].

Детальное изучение функции релаксации поляризации мюонов  $G_s$  позволяет определить параметры распределения локальных магнитных полей при различных температурах исследуемых образцов.

Так для образца HoMnO<sub>3</sub> функцию релаксации поляризации остановившихся мюонов  $G_s(t)$  в нулевом магнитном поле удается описать зависимостью

$$G_s(t) = [a_1 \cdot (1/3 + 2/3 \cdot \cos(\Omega_1 \cdot t) \cdot \exp(-\Delta_1 \cdot t)) +$$

$$+ a_2 \cdot (1/3 + 2/3 \cdot \cos(\Omega_2 \cdot t) \cdot \exp(-\Delta_2 \cdot t))] \cdot \exp(-\lambda \cdot t), \quad (4)$$

где  $a_1 + a_2 = a_s$  – начальная асимметрия распада мюонов, остановившихся в образце;  $\lambda$  – скорость динамической релаксации;  $\Omega_{1,2} = 2\pi \cdot F_{1,2}$  – циклические частоты (связанные со средним локальным полем в месте локализации мюона);  $\Delta_{1,2}$  – разброс частот, связанный с разбросом внутренних магнитных полей.

На рис.2 и 3, для примера, приведены функции релаксации поляризации  $G_s(t)$  для образца HoMnO<sub>3</sub>

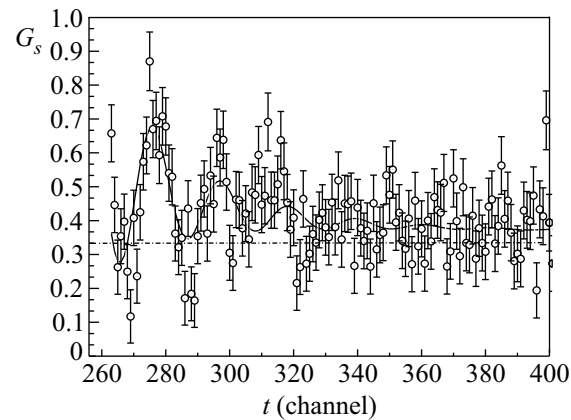


Рис.2. Функции релаксации поляризации  $G_s(t)$  для образца HoMnO<sub>3</sub> в нулевом поле при температуре 50 К;  $a_1 = 0.173(9)$ ,  $a_2 = 0.099(9)$ ;  $F_1 = 58(1)$  МГц,  $\Delta_1 = 48(1)$  МГц;  $F_2 = 0$  МГц,  $\Delta_2 = 37(7)$  МГц. По горизонтальной шкале (время  $t$ ) один канал соответствует 0.8 нс, ноль времени находится в 256 канале

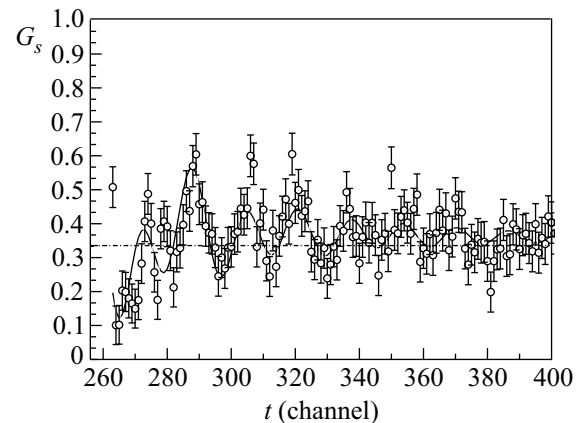


Рис.3. Функции релаксации поляризации  $G_s(t)$  для образца HoMnO<sub>3</sub> в нулевом поле при температуре 30 К;  $a_1 = 0.100(26)$ ,  $a_2 = 0.172(26)$ ;  $F_1 = 75(4)$  МГц,  $\Delta_1 = 24(2)$  МГц;  $F_2 = 40(1)$  МГц,  $\Delta_2 = 63(6)$  МГц. По горизонтальной шкале (время  $t$ ) один канал соответствует 0.8 нс, ноль времени находится в 256 канале

для двух характерных температур (между первым и вторым фазовыми переходами  $T = 50$  К и после второго, спин-ротационного перехода  $T = 30$  К).

На рис.4 показана зависимость частот прецессии спина мюона во внутренних магнитных полях от

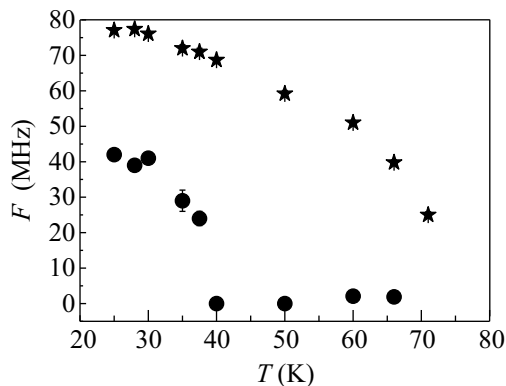


Рис.4. Поведение частот наблюдаемой прецессии  $F$  от температуры образца  $\text{HoMnO}_3$  в нулевом поле. Звездочки –  $F_1$ , круглые точки –  $F_2$

температуры образца  $\text{HoMnO}_3$  в нулевом внешнем магнитном поле. Видим, что при температурах образца меньше  $T = 76 \text{ K}$  наблюдается прецессия на двух частотах, одна из которых пренебрежимо мала по сравнению с другой ( $F_1 \approx 40 \text{ МГц}$ ;  $F_2 \leq 1 \text{ МГц}$ ). По мере понижения температуры образца  $F_1$  монотонно растет, а  $F_2$  уменьшается. При температурах образца ниже температуры  $T_{SR} \approx 42 \text{ K}$  частота  $F_2$  заметно возрастает (практически от 0) и продолжает монотонно расти с понижением температуры.

На рис.5 демонстрируется поведение коэффициентов  $a_1$  и  $a_2$  (см. формулу (4)) при изменении темпе-

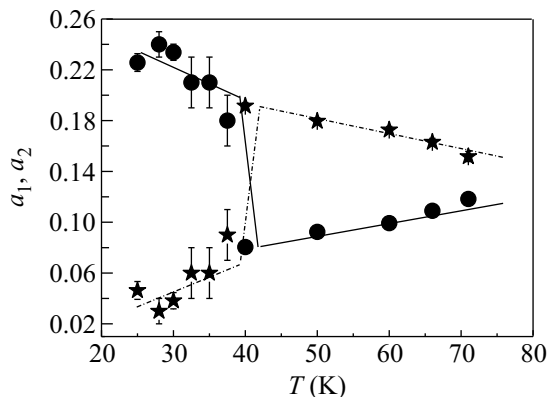


Рис.5. Зависимость асимметрии от температуры образца  $\text{HoMnO}_3$  в нулевом поле. Линии нанесены для наглядности поведения зависимости. Звездочки –  $a_1$ , круглые точки –  $a_2$ , где  $a_1 + a_2 = a_s$

ратуры образца. Видим, что при температуре спинротационного перехода ( $T_{SR} \approx 42 \text{ K}$ ) происходит резкое изменение в соотношении между коэффициентами  $a_1$  и  $a_2$ .

Аналогичные исследования были выполнены на образце  $\text{YMnO}_3$ . На рис.6–9 демонстрируются ре-

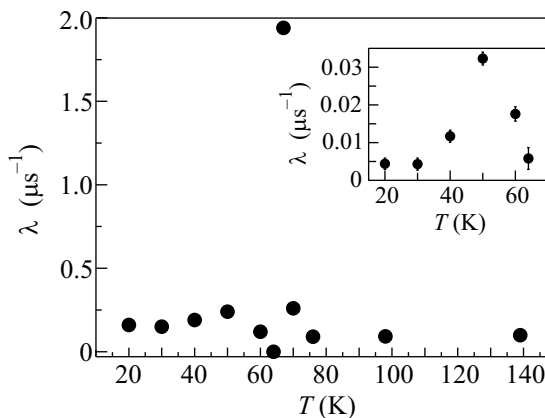


Рис.6. Скорость релаксации поляризации мюонов, остановившихся в образце  $\text{YMnO}_3$  в нулевом магнитном поле

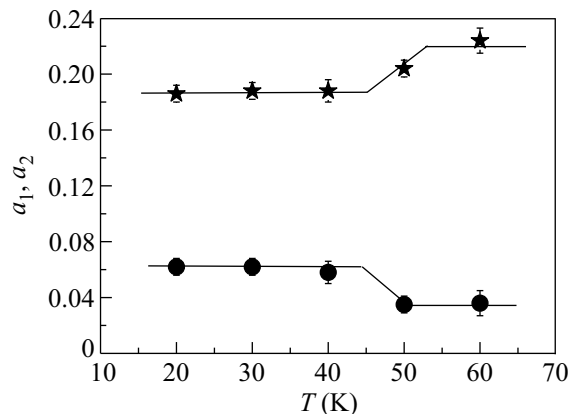


Рис.7. Зависимость асимметрии от температуры образца  $\text{YMnO}_3$  в нулевом поле. Линии нанесены для наглядности поведения зависимости. Звездочки –  $a_1$ , круглые точки –  $a_2$ , где  $a_1 + a_2 = a_s$

зультаты обработки экспериментальных данных, полученных на образце  $\text{YMnO}_3$ . В поведении зависимости скорости релаксации поляризации ( $\lambda$ ) мюонов, остановившихся в образце  $\text{YMnO}_3$ , от температуры образца виден пик при температуре  $T = 66 \text{ K}$ , который соответствует фазовому переходу парамагнетик-антиферромагнетик (рис.6). В интервале температур 45–55 K видим немонотонное поведение параметра  $\lambda$  в зависимости от температуры образца (см. вставку на рис.6).

В интервале температур 20–60 K видим прецессию на двух частотах  $F_1$  и  $F_2$ , соотношение между которыми сохраняется в указанном диапазоне температур  $F_2/F_1 \approx 2$ , рис.8.

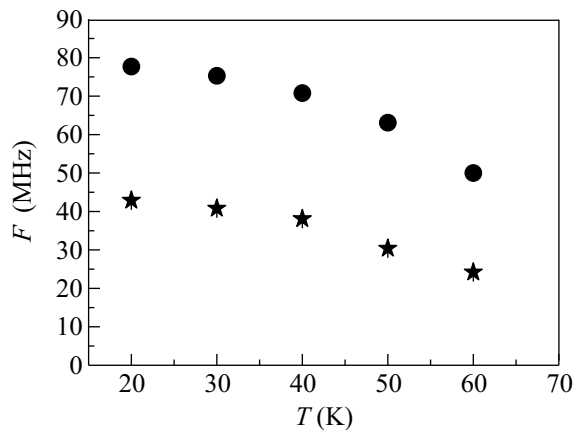


Рис.8. Поведение частот наблюдаемой прецессии  $F$  от температуры образца  $\text{YMnO}_3$  в нулевом поле. Звездочки –  $F_1$ , круглые точки –  $F_2$

На рис.9 демонстрируется поведение параметров  $\Delta_1$  и  $\Delta_2$  (разброс частот) в диапазоне температур 20–

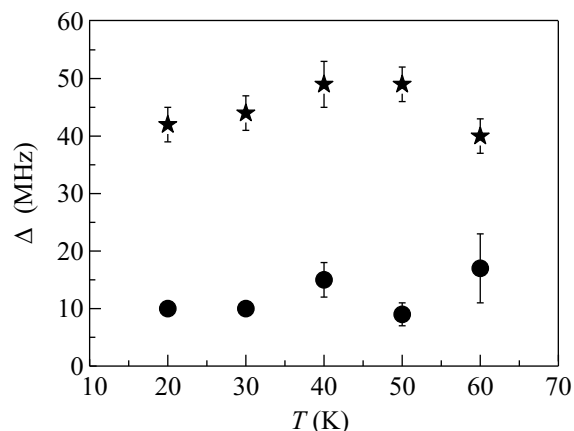


Рис.9. Зависимость  $\Delta_1, \Delta_2$  от температуры  $T$  для образца  $\text{YMnO}_3$ . Звездочки –  $\Delta_1$ , круглые точки –  $\Delta_2$

60 К. Аналогичные результаты были получены в работе [10].

Отметим особенность в поведении парциальных амплитуд  $a_1$  и  $a_2$  (см. формулу (4)) в диапазоне

температур 20–60 К. При температуре  $T \approx 50$  К наблюдается изменение в соотношении названных параметров  $a_1/a_2$  (рис.7).

Таким образом для образца  $\text{YMnO}_3$  при температуре  $\sim 50$  К видим особенности в зависимостях от температуры скорости релаксации спина мюона (рис.6) и парциальных амплитуд  $a_1$  и  $a_2$  (рис.7). Возможно, это связано с частичным поворотом спинов марганца в соединении  $\text{YMnO}_3$  [11].

Для исследованных образцов  $\text{HoMnO}_3$  и  $\text{YMnO}_3$  зависимость частоты прецессии от температуры хорошо аппроксимируется при помощи кривой Кюри-Вейса:  $F \sim F_{\text{max}} \cdot (1 - T/T_N)^\beta$  с показателем  $\beta = 0.39 \pm 0.02$ , что соответствует модели 3D-магнетика Гейзенберговского типа.

Авторы благодарны Р.В. Писареву (ФТИ им. Иоффе, г. Санкт-Петербург) за предоставленные образцы и ценные плодотворные обсуждения.

1. А. К. Звездин, А. П. Пятаков, УФН **174**, 465 (2004).
2. Manfred Fiebig, J. Phys. D: Appl. Phys. **38**, 123 (2005).
3. W. Prellier, M. P. Singh, and P. Murugavel, J. Phys: Condens. Mater **17**, 803 (2005).
4. M. A. Gilleo, Acta Crystallogr. **10**, 161 (1957).
5. M. Fiebig, D. Fröhlich, K. Kohn et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 5620 (2000).
6. T. Katsufuji, M. Masaki, A. Machida et al., Phys. Rev. B **66**, 134434 (2002).
7. С. Г. Барсов, С. И. Воробьев, В. П. Коптев и др., Препринт ПИЯФ-2694, Гатчина-2006.
8. B. Lorenz, A. P. Litvinchuk, M. M. Gospodinov, and C. W. Chu, Phys. Rev. Lett. **92**, 087204 (2004).
9. B. Lorenz, Y. Q. Wang, Y. Y. Sun, and C. W. Chu, Phys. Rev. B **70**, 212412 (2004).
10. T. Lancaster, S. J. Blundell, D. Andreica et al., Phys. Rev. Lett. **98**, 197203 (2007).
11. P. J. Brown and T. Chatterji, J. Phys: Condens. Mater **18**, 10085 (2006).