

# Микроскопические неоднородности в кристалле манганита $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ( $x = 0.175$ ) и генерация на них когерентных магнитоупругих колебаний

Х. Г. Богданова, А. Р. Булатов<sup>+</sup>, В. А. Голенищев-Кутузов, А. В. Капралов<sup>+</sup>, А. В. Потапов<sup>+</sup>

Казанский физико-технический институт Казанского научного центра РАН, 420029 Казань, Россия

<sup>+</sup> Казанский государственный энергетический университет, 420066 Казань, Россия

Поступила в редакцию 22 июля 2003 г.

Исследованы температурные зависимости амплитуды и скорости ультразвуковых волн на частоте 770 МГц в монокристалле манганита  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  ( $x = 0.175$ ). Обнаружена генерация магнитоупругой волны вблизи магнитного фазового перехода. Сопоставимость зависимостей намагниченности и магнитострикции от температуры с характером изменения амплитуды и скорости магнитоупругой волны позволяет полагать, что генерация когерентных магнитоупругих колебаний происходит на микронеоднородностях (магнитоупругих доменах), присущих манганиту данного состава.

PACS: 62.65.+k, 75.50.Pp

Лантан-стронциевые манганиты с содержанием ионов Sr в пределах 0.15–0.18 уже давно привлекают пристальное внимание необычностью ряда физических характеристик. В этом интервале значений  $x$  происходит структурный переход от ромбоэдрической структуры к орторомбической, один и, возможно, несколько структурных переходов происходят и с изменением температуры при сохранении концентрации ионов Sr. Магнитная структура также претерпевает изменения, причем зависимость температуры перехода ( $T_c$ ) от парамагнитного состояния в ферромагнитное имеет значительный скачок (от  $T_c$  ( $x = 0.155$ ) = 240 К до  $T_c$  ( $x = 0.185$ ) = 291 К) [1, 2]. Характер электропроводности также претерпевает кардинальное изменение от диэлектрического ( $x \leq 0.17$ ) к металлическому ( $x \geq 0.175$ ). Параметры переходов могут значительно изменяться под действием приложенного магнитного поля, например, наблюдается колоссальное магнетосопротивление (КМС). Таким образом, из приведенных выше данных можно констатировать, что для данных составов манганитов характерна своеобразная мягкость кристаллической решетки, способствующая изменению ее структуры под действием температуры, магнитного поля и кооперативного эффекта Яна-Теллера для ионов  $\text{Mn}^{3+}$ .

В последние годы большое внимание было обращено на различного вида нано- и микроразмерные неоднородные состояния, связанные со спиновым, зарядовым или орбитальным упорядочениями. По-видимому, наибольшее разнообразие таких неоднородностей и, особенно, микроскопического разме-

ра может существовать в указанных выше составах манганитов, причиной чего может быть конкуренция различных магнитных и структурных состояний. На возможность существования микроструктур в данном диапазоне концентраций ионов Sr было указано в работе Дарлинга с соавторами [3], в которой было предположено, что микроструктуры возникают в ромбоэдрической фазе, где образуются малые области с одинаковым ромбоэдрическим искажением, отличным от исходной кубической структуры. На границах структурных неоднородностей возникают упругие напряжения, что позволяет отнести их к структурным упругим доменам. Поскольку разность энергий между ромбоэдрической решеткой и более искаженной орторомбической по расчетам авторов [3] мала, то вполне возможен переход от одной структуры к другой в приложенном магнитном поле в несколько тесла.

На возможность возникновения микроскопических структурных неоднородностей за счет сосуществования орторомбической и ромбоэдрической фаз указывалось и в работе [4]. В ряде работ существование неоднородных состояний в манганитах было подтверждено в экспериментах по спектрам ЯМР  $^{55}\text{Mn}$  [5], ферромагнитного резонанса [6], нейтронной дифракции [7]. В последнее время наиболее распространенной является модель, в которой ответственным за неоднородные состояния является фазовое расслоение, связанное с возникновением области сосуществования различных магнитных или структурных фаз в определенных концентрационных или температурных диапазонах.

Определенные дополнительные возможности по изучению особенностей структурных и магнитных фазовых переходов, а также различных неоднородностей спинового и зарядового упорядочения имеют ультразвуковые (УЗ) исследования. Во-первых, скорости УЗ волн зависят от характера упругих и магнитоупругих (МУ) взаимодействий, которые значительно изменяются при фазовых переходах. Во-вторых, поскольку наиболее сильное взаимодействие УЗ волн возникает при соответствии размеров каких-либо неоднородностей длине УЗ волн, то именно при использовании таких высокочастотных колебаний возможно изучение неоднородных или многофазных образований в манганитах. В-третьих, высокая частота УЗ позволяет преодолевать щель в спектре спиновых волн и таким образом использовать динамическое взаимодействие спиновых и упругих волн, существующее в магнитоупорядоченном состоянии манганитов [8]. Не случайно выводы о структурных неоднородностях в работах [3, 4] основывались на результатах распространения УЗ волн в частотном диапазоне 1–3 МГц. Однако длина ультразвуковых волн для данного мегагерцевого диапазона ( $\sim 5$ –10 мм) на много порядков превышала размеры предполагаемых микрон неоднородностей.

Поэтому мы предприняли изучение особенностей фазовых переходов и возможных микроскопических неоднородностей с использованием УЗ волн на частоте 700 МГц [9]. Для экспериментов был выбран монокристалл  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  ( $x = 0.175$ ), поскольку именно при этом значении концентрации ионов Sr структурный и магнитный фазовые переходы наиболее близки по температурной шкале и наблюдалось наибольшее значение КМС. Образец имел форму прямоугольного параллелепипеда с размерами  $4.85 \times 8.2 \times 7.9$  мм, торцы которого были плоскопараллельны с точностью до нескольких секунд. Грани образца были перпендикулярны осям [100], [010], [001] в кубическом представлении. УЗ импульсы ( $\tau \cong 0.5$ –0.8 мкс) возбуждались и принимались с помощью стержневых пьезопреобразователей. Импульсы распространялись вдоль оси [100]. Скорость и затухание ультразвуковых волн в зависимости от температуры в диапазоне (260–340) К и приложенного магнитного поля  $H = 1$  Тл определялись по схеме пьезопреобразователь – образец – пьезопреобразователь. Поскольку длительность импульса была сравнима со временем его прохождения через образец, то в образце могли одновременно генерироваться различные колебательные моды за счет упругой или магнитной нелинейностей. При высокой акустической добротности ( $\geq 10^3$ ) эти колебания становились когерентными.

Использование длинных пьезопреобразователей позволяло осуществлять временное разделение УЗ импульсов, соответствующих различным модам и поэтому распространяющихся с различными скоростями. Детектирование импульсов на выходе приемного пьезопреобразователя осуществлялось широкополосным приемником. Монокристалл, выращенный в группе А. М. Балбашова в МЭИ, был, как показал рентгеноспектральный анализ, фазово- и химически однородным.

Наиболее интересные результаты были получены при распространении квазипродольной волны. В интервале  $T = (310$ –340) К скорость и затухание волны мало изменялись (рис. 1а и 2а). Постоянство скорости также свидетельствовало о сохранении квазипродольной моды. Приложенное магнитное поле практически не изменяло параметров акустической волны.

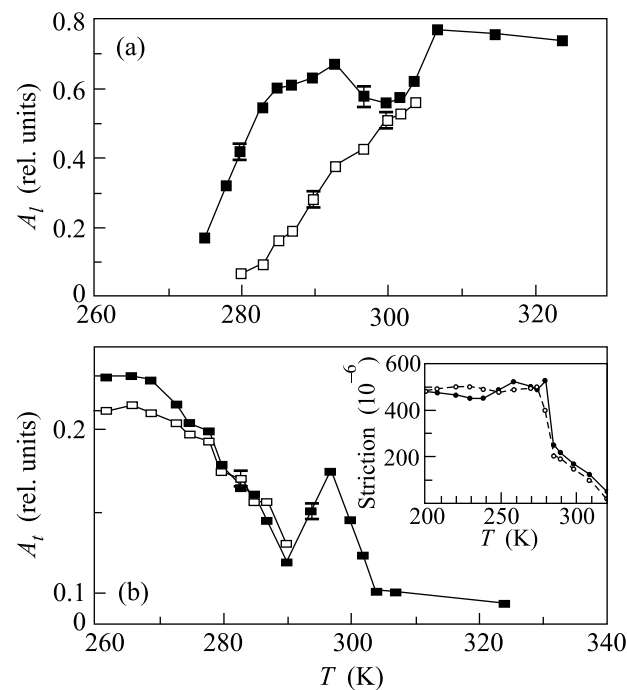


Рис. 1. Температурные зависимости амплитуды продольной (а) и поперечной (б) мод ультразвуковых колебаний: ■ – данные, полученные в нулевом магнитном поле; □ – в поле  $H = 1$  Тл. На вставке к рис. (б) приведена температурная зависимость магнитострикции, полученная в образце  $\text{La}_{0.83}\text{Sr}_{0.17}\text{MnO}_3$  в нулевом магнитном поле (●) и поле  $H = 1$  Тл (○) (из работы [8])

Первая аномалия в затухании и скорости квазипродольной волны наблюдалась вблизи  $T = 305$  К. По температурному гистерезису мы отнесли ее к переходу первого рода, связанного с частичным переходом от ромбоэдрической к орторомбической фазе. Такое

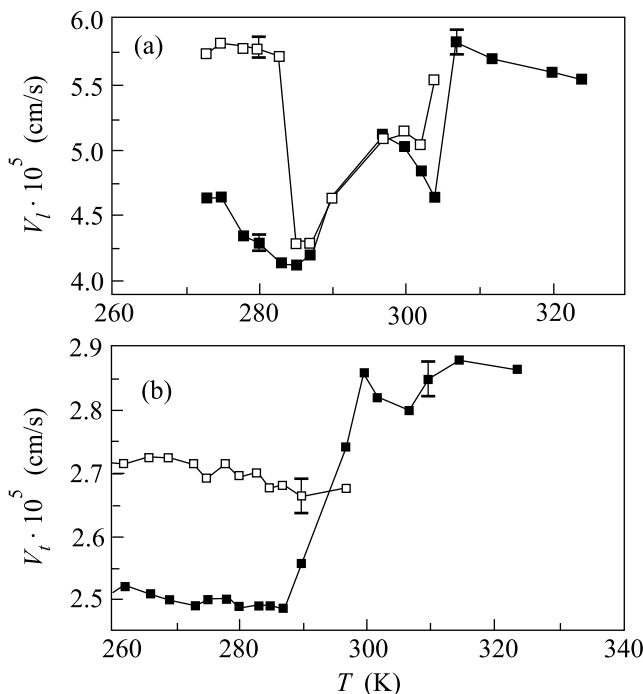


Рис. 2. Температурные зависимости скорости продольной (а) и поперечной (б) мод ультразвуковых колебаний; ■ – данные, полученные в нулевом магнитном поле; □ – в поле  $H = 1$  Тл

закключение основано на том экспериментальном факте, что второе гистерезисное изменение параметров УЗ волны наблюдалось нами [10] вблизи  $T = 220$  К, что свидетельствовало об окончательном переходе в орторомбическую структуру.

Вторая аномалия наблюдалась вблизи  $T = 283$  К и была вызвана магнитным фазовым переходом в ферромагнитную фазу, что и подтверждается магнитными измерениями [10]. Если исключить температурные интервалы изменений УЗ параметров, связанных со структурным и магнитным фазовыми переходами, то ниже  $T = 300$  К наблюдается значительное изменение амплитуды и скорости квазипродольной моды. Приложение магнитного поля в этом температурном диапазоне приводит к еще более резкому уменьшению амплитуды и возрастанию скорости.

Одновременно с 305 К, помимо импульса квазипродольной волны, регистрируется новый УЗ импульс. Фазовая скорость его распространения, определенная по времени прохождения через образец, варьируется в пределах  $V_t = (2.5-2.9) \cdot 10^5$  см/с и зависит от температуры образца (рис.2б). Его амплитуда возрастает до  $T = 270$  К, а далее сохраняется практически неизменной при понижении температуры. Характер возрастания амплитуды совпа-

дает с температурным ростом намагничивания для данного образца. Приложение магнитного поля приводит к росту амплитуды данной моды, то есть воздействие поля имеет обратное влияние по отношению к квазипродольной моде и также заканчивается при  $T \leq 270$  К. Скорость данной моды уменьшается вблизи магнитного фазового перехода и возрастает в приложенном магнитном поле (рис.2б). Таким образом, по значению скорости, температурного и магнитного влияния на значения и  $V_t$  данную моду можно отнести к магнитоупругой волне.

Наибольшее внимание привлекает вопрос, каким образом квазипродольная волна могла трансформироваться в квазипоперечную магнитоупругую волну?

Как известно, в кристаллах лишь в направлениях высокой симметрии распространяются одна чисто продольная и две вырожденные поперечные волны. Следовательно, далее, в отсутствие какой-либо магнитоупругой связи дисперсионные соотношения для скоростей упругих волн при произвольном направлении волнового вектора будут весьма сложными. Еще более усложненной будет картина распространения упругих волн с учетом МУ взаимодействия. Если при распространении волн вдоль направлений высокой симметрии с магнитоном будут связаны только поперечные волны, то при произвольном направлении распространения продольная упругая мода также связана с магнитным спектром. Именно подобное распространение квазипродольной УЗ волны имеет место в случае ромбоэдрической симметрии манганита исследуемого состава (рис.1а и 2а). Обнаруженная модовая трансформация, как следует из работы [11], наиболее эффективно может возникнуть за счет смещения доменных границ магнитоупругих доменов или изменения их размеров (механизм магнитострикции). Усиление связанных магнитоупругих волн будет возникать в условиях размерных акустических резонансов, когда длина акустической волны кратна размеру образца или магнитоупругих неоднородностей ( $L$ ). Вследствие индуцированной акустической нелинейности в образце с сильным МУ взаимодействием возникает спектр высших гармоник акустических колебаний на частотах

$$f_n = V(2n + 1)/2L; \quad n = 0, 1, 2, \dots$$

Хотя амплитуды гармоник убывают с ростом  $n$ , эффективные колебания можно ожидать для первых гармоник. Для частоты  $f = 7 \cdot 10^8$  Гц длина акустических волн укладывается в диапазон нескольких микрометров, то есть эффективное преобразование акустических волн в МУ волну в принципе может происходить на наноструктурах порядка сотен и

тысяч ангстрем при распространении акустических волн с различной поляризацией вдоль различных направлений в кристалле. Если предположить, что в образце при определенных концентрационных и температурных условиях возникают микроскопические неоднородности, попадающие по размерам в спектр магнитоакустических колебаний, то на выходе образца возможно распространение двух видов акустических волн, испытывающих трансформацию вследствие магнитоупругого взаимодействия. Следует отметить, что процесс генерации МУ колебаний возникает практически на всех магнитных неоднородностях, однако формирование когерентной моды происходит за счет высокой добротности образца при многократном отражении колебаний от плоскопараллельных торцов (принцип возникновения когерентности в акустическом резонаторе). Как показали теоретические расчеты и экспериментальные результаты, генерация МУ колебаний в однородном образце на порядок менее эффективна, чем на микроскопических МУ доменах, в качестве которых и выступают микроскопические неоднородности. Дополнительное доказательство предложенной модели можно найти в температурном процессе магнитострикции, поскольку МУ взаимодействие пропорционально магнитострикции, температурное поведение которой было изучено в работе [8]. Таким образом, можно полагать, что обнаруженное возрастание магнитострикции от нулевых значений при  $T \geq 300$  К до  $5 \cdot 10^{-4}$  при  $T \leq 260$  К для образца аналогичного состава ( $x = 0.17$ ), вызванное увеличением объема ферромагнитной фазы, может приводить к эффективной генерации МУ волн на неоднородностях. Такому возрастанию магнитострикции соответствует изменение скоростей ультразвуковых волн, которые также пропорциональны величине магнитоупругого взаимодействия.

Температурная зависимость возрастания амплитуды МУ колебаний в поле удовлетворяет процессу намагничивания данного образца и изменению магнитострикции (рис.1b). В приложенном магнитном поле ( $H = 1$  Тл) возникает увеличение интенсивности МУ колебаний вблизи  $T_c$ , что соответствует такому же скачку в магнитострикции, и соответствующее резкое уменьшение интенсивности продольной волны. Последнее можно связать только с уменьшением объема немагнитной фазы. При понижении  $T$  до 260 К с окончанием процесса увеличения намагниченности и стрикции значение амплитуды МУ волны в поле несколько уменьшается, что соответствует полемому уменьшению магнитострикции в том же температурном диапазоне. Причем наибольшее изменение магнитострикции возникает в поле  $0.8 \leq H \leq$

$\leq 1.5$  Тл. Таким образом, пока остается открытой для обсуждения природа обнаруженных микроскопических неоднородностей. На наш взгляд, их образование первично связано с двухфазным структурным состоянием (ромбоэдрической и орторомбической фазами) в широкой области температур. Именно с началом обнаруженного структурного фазового перехода связано образование второй УЗ моды. Поскольку внутренняя энергия орторомбической фазы несколько больше энергии ромбоэдрической фазы, то и процесс намагничивания их будет различен. Для орторомбической фазы процесс намагничивания будет конкурировать со структурным разбросом осей элементарных ячеек. Следовательно, можно говорить о характерных для данного состава хаотически расположенных магнитоупругих доменах, образованных структурными неоднородностями.

Таким образом, в работе показана возможность возникновения магнитоупругих доменов, на границах которых возникают упругие напряжения. Их колебания в поле ультразвуковой волны и создают магнитоупругие волны. При длительности квазипродольного УЗ импульса, сравнимой со временем прохождения его через образец с высокой акустической добротностью, в образце возбуждается квазикогерентная магнитоупругая волна. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 02-04-16440).

1. A. Urushibara, Y. Moritomo, T. Arima et al., Phys. Rev. **B51**, 14103 (1995).
2. B. Dabrowski, X. Xiong, Z. Bukowski et al., Phys. Rev. **B60**, 7006 (1999).
3. E. Darling, A. Migliori, E. G. Moshopoupou et al., Phys. Rev. **57**, 5093 (1998).
4. R. I. Zainullina, N. G. Bebenin, A. M. Burkhanov et al., Phys. Rev. **B66**, 064421 (2002).
5. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, Phys. Rep. **344**, 1 (2001).
6. Н. А. Виглин, С. В. Наумов, Я. М. Муковский, ФТТ **43**, 1855 (2001).
7. Y. Yamada, O. Hino, S. Nohdo et al., Phys. Rev. Lett. **77**, 904 (1996).
8. A. Asamitsu, Y. Moritomo, R. Kutai et al., Phys. Rev. **B54**, 1716 (1996).
9. Х. Г. Богданова, В. А. Голенищев-Кутузов, В. Е. Леонтьев и др., ПТЭ **3**, 1 (1997).
10. Х. Г. Богданова, А. Р. Булатов, В. А. Голенищев-Кутузов и др., ФТТ **45**, 298 (2003).
11. Е. А. Туров, А. А. Луговой, ФММ **50**, 903 (1980).