

# Критическая динамика однородной намагниченности выше $T_c$ в монокристаллическом $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$

И. Д. Лузянин<sup>1)</sup>, В. П. Хавронин, В. А. Рыжов, И. И. Ларионов, А. В. Лазута

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

Поступила в редакцию 15 февраля 2001 г.

Для выяснения применимости теории подобия при описании критических явлений в манганитах с кубической симметрией на монокристаллическом образце манганита  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$  было проведено изучение поведения линейной и нелинейной динамических восприимчивостей. Результаты экспериментов для обменной области температур ( $4\pi\chi \ll 1$ ) оказались в удовлетворительном согласии с предсказаниями теории. В то же время в парамагнитной фазе было обнаружено возникновение магнитоупорядоченных образований, что, по-видимому, связано с орбитальным упорядочением.

PACS: 75.40.Gb

Критическая динамика однородной намагниченности простых кубических ферромагнетиков теоретически и экспериментально изучена довольно хорошо, а результаты этих исследований находятся в удовлетворительном согласии друг с другом. Однако применимость теории подобия к магнитным фазовым переходам второго рода в таких сложных, не являющихся гейзенберговскими, магнетиках, как манганиты, не очевидна. В то же время, насколько нам известно, целенаправленные экспериментальные исследования критических явлений в манганитах не проводились.

Очевидно, что изучение критической динамики сложных магнетиков следует начинать с наиболее простых систем. С этой целью нами было проведено исследование критического поведения линейной и нелинейной восприимчивостей в парамагнитной фазе манганита  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$ , обладающего кубической симметрией. Особое внимание было уделено исследованиям нелинейного отклика на воздействие переменного магнитного поля. Как будет видно ниже, высшие гармоники значительно более сингулярны, чем линейная восприимчивость, что позволяет более надежно проверить применимость теории подобия. Удовлетворительное согласие экспериментальных и теоретических результатов было получено для области температур, соответствующей значениям статической восприимчивости  $4\pi\chi_0 < 1$ , в то время как при более низких температурах наблюдались явления, связанные, по-видимому, с орбитальным упорядочением.

Динамика однородной намагниченности определяется взаимодействиями, не сохраняющими полного спина системы. В случае кубических ферромагнетиков основным таким взаимодействием, как правило, является дипольное, им обычно и ограничиваются при описании динамики критических флуктуаций однородной намагниченности. При этом, согласно существующим представлениям, распад флуктуаций происходит релаксационным образом, а основной величиной, характеризующей этот процесс, является коэффициент критического затухания  $\Gamma$ . В теории динамического подобия в зависимости от относительной роли дипольных сил различают две температурные области, соответствующие значениям статической восприимчивости  $4\pi\chi_0 \ll 1$  (обменная область) и  $4\pi\chi_0 \gg 1$  (дипольная область). В обменной области характерная энергия критических флуктуаций  $\Omega_e \approx kT_c\tau^{5/3}$ , а обратное время релаксации однородной намагниченности  $\Gamma_H$  обусловлено дипольными силами и растет с приближением к  $T_c$  как  $\Gamma_H \propto \tau^{-1}$  [1],  $\tau = (T - T_c)/T_c$  – относительная температура.

В дипольной области характерная энергия критических флуктуаций и обратное время релаксации однородной намагниченности  $\Gamma_0$  – величины одного порядка. В теории принято рассматривать два варианта поведения  $\Gamma_0$  в этой области:  $\Gamma_0 \propto \tau^{4/3}$  – нормальный (“мягкий”) [2] и  $\Gamma_0 \propto \tau^{2/3}$  – “жесткий” [3].

Рассмотрим теперь поведение линейной и нелинейной восприимчивостей в кубическом ферромагнетике выше  $T_c$  в отсутствие постоянного магнитного поля. Пусть образец, находящийся при  $T > T_c$ , помещен в переменное магнитное поле  $h = h_0 \cos \omega t$ . Тогда для достаточно слабого поля выражение для на-

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

магнитности, очевидно, можно представить в виде ряда:

$$m(h) = \chi_0(\omega)h + \chi_3(\omega)h_0^3 + \chi_5(\omega)h_0^5 + \dots \quad (1)$$

Здесь  $\chi_0(\omega)$  – продольная линейная динамическая восприимчивость, а  $\chi_{2n+1}(\omega)$ ,  $n = 1, 2, 3, \dots$  – нелинейные динамические восприимчивости. Соответствующие выражения для статического случая можно найти в [4]. Следует отметить, что нелинейные динамические явления в критической области ферромагнетиков теоретически и экспериментально изучены сравнительно слабо. По существу имеются лишь работы [5], в которой теоретически рассмотрены некоторые предельные случаи, и [6], где детально рассмотрена вторая гармоника намагнитности. В дальнейшем мы будем использовать некоторые результаты работы [5] для случая достаточно низких частот и низких гармоник ( $n\omega \sim \omega$ ).

Следует подчеркнуть, что разложение (1) справедливо лишь при условии малости магнитного поля [4]

$$g\mu h_0 \ll kT_c \tau^{5/2}; \quad (2)$$

здесь введены стандартные обозначения  $g$ -фактора и магнетона Бора  $\mu$ . Очевидно, что выполнение этого довольно жесткого условия является обязательным при сравнении экспериментальных и теоретических результатов. При таком сравнении необходимо также, чтобы и частота переменного поля была бы мала по сравнению с характерной энергией критических флуктуаций. Для обменной области это условие можно записать как

$$\omega \ll \Gamma_H \ll \Omega_e, \quad (3)$$

в дипольной области как

$$\omega \ll \Gamma_0. \quad (4)$$

В случае низких частот в отсутствие постоянного магнитного поля в рамках теории подобия для нечетных гармоник в [5] было получено следующее выражение:

$$m_{2n+1}(t) = 2M(\tau) \left( \frac{g\mu h_e S}{2\Omega_e} \right)^{2n+1} \times \\ \times \frac{r_{2n+1}(0)}{1 + 4\pi\chi_0 N} \cos(2n+1)\omega t, \quad (5) \\ h_e = h_0 / (1 + 4\pi\chi'(\omega)N).$$

Здесь  $M(\tau) = M_0 \tau^\beta$ , где  $\beta \approx 1/3$ , а  $M_0$  – величина порядка спонтанного магнитного момента при  $T = 0$ ,  $N$  – фактор размагничивания,  $S$  – атомный спин,

$r_{2n+1}$  – не зависящая от  $\tau$  безразмерная амплитуда. Из этого приближения следует, что

$$\chi_0 \propto \tau^{-4/3}, \quad \chi_3 \propto \tau^{-14/3}, \quad \chi_5 \propto \tau^{-24/3}, \dots \quad (6)$$

При наличии постоянного поля наряду с нечетными гармониками в отклике появляются и четные гармоники осцилляций намагнитности на частотах  $\omega_{2n} = 2n\omega$ . Когда переменное и постоянное поля коллинеарны, в случае малых частот ( $\omega < g\mu H$ ) и слабого поля ( $g\mu h_0, g\mu H < \Omega_e$ ), согласно [5], выражение для четных гармоник имеет вид

$$m_{2n}(t) = 2M(\tau) \left( \frac{g\mu h_e S}{\Omega_e} \right)^{2n} \times \\ \times \frac{g\mu H S}{2\Omega_e} \frac{(2n+1)r_{2n}(0)}{1 + 4\pi\chi_0 N} \cos 2n\omega t. \quad (7)$$

Из (5) и (7) видно, что как нечетные, так и четные гармоники сингулярны в точке Кюри, разумеется, в пределе  $\omega \rightarrow 0$ ,  $h \rightarrow 0$ . Характерной особенностью выражений (5) и (7) является то, что вся зависимость от формы образца, то есть от  $N$ , вошла в выражение, которое определяет замену внешнего поля на внутреннее, а также в дополнительный множитель  $(1 + 4\pi\chi_0 N)^{-1}$ . Все остальные множители в этих выражениях не зависят от  $N$ . Такая же связь  $m_{2n+1}$  и  $m_{2n}$  с  $N$  имеет место вне зависимости от конкретного вида теории, описывающей магнитную систему. Это непосредственно следует из метода вывода формул (5) и (7), применяемого в [5]. Как видно из (5) и (7), при  $N \neq 0$  и  $4\pi\chi > 1$  убывание высших гармоник с ростом  $n$  усиливается благодаря размагничиванию.

Исследования поведения линейной и нелинейной динамических восприимчивостей проводились на монокристаллическом образце  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$  размером  $2 \times 2 \times 3$  мм ( $m = 54.5$  мг). По данным рентгеновской дифракции образец является однофазным и имеет кубическую структуру как выше, так и ниже  $T_c$  ( $a = 3.899$  Å при  $T = 300$  К в согласии с данными работы [6]).

Измерения действительной ( $\chi'$ ) и мнимой ( $\chi''$ ) частей линейной восприимчивости, амплитуды третьей гармоники были выполнены в диапазоне  $1 \div 100$  кГц. Данные для действительной ( $\text{Re}M_2$ ) и мнимой ( $\text{Im}M_2$ ) компонент второй гармоники намагнитности в параллельных постоянном и переменном магнитных полях были получены как функции постоянного поля  $H$  на частоте  $f = 15.7$  МГц.

При изучении критических явлений наиболее важной и вместе с тем трудной задачей является

определение температуры фазового перехода. Действительно, в  $T_c$  радиус корреляции бесконечен, то есть все величины, связанные с ним, сингулярны в этой температурной точке. Однако из-за конечной величины магнитного поля, нестабильности температуры и тому подобного этого на опыте и не наблюдается. Поэтому, вообще говоря, можно ожидать, что температурные зависимости величин, физически сингулярных в  $T_c$ , будут иметь максимум при температуре, которую можно назвать экспериментальной точкой Кюри. Тем не менее и это не всегда имеет место. Например, в температурной зависимости действительной части восприимчивости максимум, обязанный сингулярности в  $T_c$ , как правило, не наблюдается (за исключением особенности при  $T > T_c$ , обусловленной переходом от режима  $\omega \ll \Gamma_0$  к режиму  $\omega \gg \Gamma_0$ , см.[7]), что связано, по-видимому, с возникновением доменной структуры сразу ниже  $T_c$ . Поэтому необходимо искать другие приемы для определения температуры фазового перехода. В данной работе, как и в [8,9], точка Кюри определялась по положению максимума в температурной зависимости амплитуды третьей гармоники. В исследованиях [8,9], выполненных на монокристаллических образцах  $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$  и  $\text{CdCr}_2\text{S}_4$ , было показано, что таким образом полученная точка Кюри совпадала с ее определением из температурного поведения коэффициента критического затухания  $\Gamma_0$ , что указывало на справедливость использования самых общих скейлинговых соображений при выборе  $T_c$ .

Обратимся к полученным температурным зависимостям линейной и нелинейной восприимчивостей. В связи с основной задачей работы особое внимание будет уделено данным для обменной области ( $4\pi\chi_0 < 1$ ). При  $4\pi\chi_0 > 1$  (дипольная область) из-за эффектов размагничивания, связанных с формой образца, сравнивать экспериментальные результаты с теорией, очевидно, не представляется возможным.

Рис.1 демонстрирует температурную зависимость восприимчивости третьего порядка, на котором отмечен максимум, связанный с точкой Кюри ( $T_c = 124.1(0.03)$  К), а на вставке изображена зависимость  $4\pi\chi_3$  от  $\tau$ . Показатель этой степенной зависимости оказался равным  $5.4(0.2)$ , что не противоречит предсказанию теории подобия (5). Небольшой интервал  $\tau$ , в котором наблюдается скейлинговая зависимость  $\chi_3$  от  $\tau$ , обусловлен, с одной стороны, малостью самой величины третьей гармоники при достаточно большом удалении от  $T_c$ , а с другой – более сильным влиянием фактора размагничивания для высших гармоник, чем для линейной восприимчивости. Отметим, что во всем

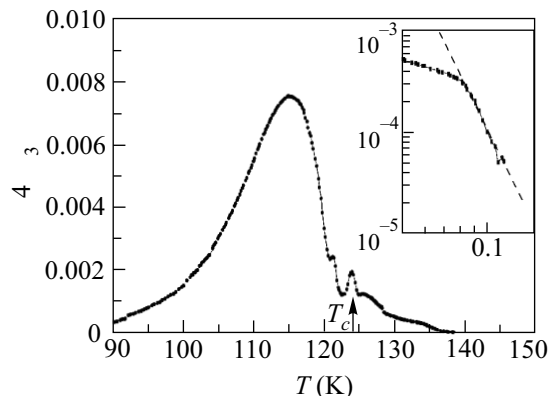


Рис.1. Температурная зависимость восприимчивости  $4\pi\chi_3$ . На вставке представлена зависимость  $4\pi\chi_3(\tau)$ .  $H = 0$ ,  $h_0 = 1$  Э

температурном интервале измерений амплитуда третьей гармоники была пропорциональна  $h_0^3$ , то есть соблюдалось важное условие слабого поля. Кроме того, как видно из рис.2, зависимость  $\chi''(T)$  также имеет максимум при  $T \approx 124.1$  К, что связано, по-видимому, с явлением критического замедления. Из этой зависимости видно, что в обменной области ( $4\pi\chi_0 < 1$ ) мнимая часть линейной восприимчивости крайне мала и поэтому в ней можно полагать  $\chi' = \chi_0$ .

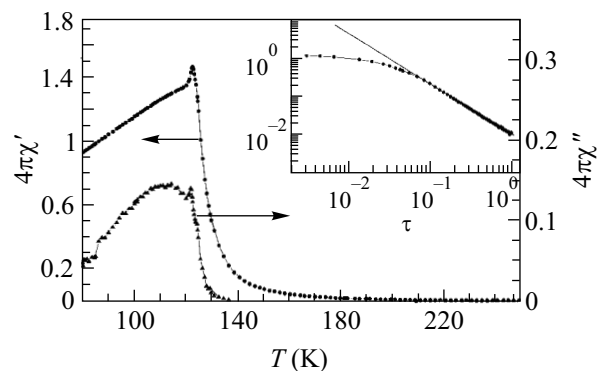


Рис.2. Температурная зависимость линейной восприимчивости. На вставке представлена зависимость ее действительной части от относительной температуры.  $H = 0$ ,  $h_0 = 1$  Э

Из зависимости  $\chi'(T)$  (рис.2) с использованием значения  $T_c = 124.1$  К было найдено, что в интервале  $\tau$ , перекрывающем порядок,  $\gamma = 1.34(0.01)$  (вставка к рис.2). В то же время, методом наилучшего соответствия экспериментальных данных закону  $\chi \propto \tau^{-\gamma}$  ( $\gamma = 4/3$ ) было определено значение  $T_c = 124.15$  К, практически соответствующее высокотемпературному максимуму в зависимости  $4\pi\chi_3(T)$  (рис.1). Отклонение от скейлингового закона наблюдается при  $\tau \approx 0.1$ , что также можно связать с влиянием факто-

ра размагничивания. Как видно из рис.2, переход от обменной области к дипольной ( $4\pi\chi \approx 1$ ) происходит при  $\tau \leq 1 \cdot 10^{-2}$  ( $T \leq 127$  К).

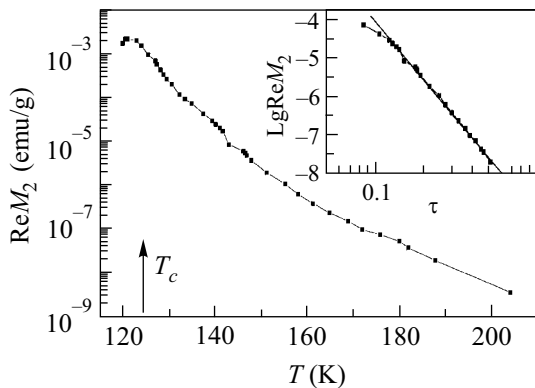


Рис.3. Температурная зависимость действительной части второй гармоники намагниченности. На вставке представлена зависимость  $\text{Re}M_2(\tau)$ .  $H \approx 200$  Э

Из результатов экспериментов со второй гармоникой остановимся на температурной зависимости ее действительной части (рис.3). В температурном интервале  $147 < T < 210$  К ( $0.2 < \tau < 0.9$ )  $\text{Re}M_2$  пропорциональна  $H$  и  $h_0^2$ , что свидетельствует о соблюдении условия малости этих полей. В то же время, из измерений спектра ЭПР было определено, что отношение  $\omega/\Gamma \sim 10^{-2}$ . Это позволяет считать, что мы имеем дело с квазистатическим случаем. Из вставки на рис.3 видно, что зависимость  $\text{Re}M_2(\tau)$  имеет степенной вид, показатель которого оказался равным 5.2(0.2), что достаточно хорошо согласуется с его ожидаемым значением (см.(7)).

Отклонение температурных зависимостей  $\chi'$ ,  $\chi_3$  и  $\text{Re}M_2$  от степенного вида при  $4\pi\chi_0 \approx 1$  связано как с эффектами размагничивания, так и с возникновением магнитоупорядоченных образований. Действительно, при  $T = 146.7$  К ( $\tau \approx 0.2$ ) мнимая часть второй гармоники  $\text{Im}M_2$  характерна появлением гистерезиса по постоянному полю, а  $\text{Re}M_2(H)$  – двумя областями линейной зависимости с разными наклонами. Гистерезис второй гармоники в очень слабом поле  $H \sim 5$  Э наблюдался при  $\tau \leq 0.08$  и на низких частотах. Таким образом, можно предположить, что выше  $T_c$  возникают магнитоупорядоченные образования. Отметим, что аномальные явления частично захватывают область  $\tau$ , где наблюдается скейлинговый характер зависимости  $\chi_0(\tau)$ , не изменяя величину  $\gamma$ , что, по-видимому, обусловлено малым объемом, занимаемым этими образованиями. Тем не менее, несколько завышенные, по сравнению с предсказанными теорией, значения показателей зависи-

моостей  $\chi_3(\tau)$  и  $\text{Re}M_2(\tau)$  могут быть связаны с этим явлением. Так как исследуемый кристалл обладает кубической симметрией, то ян-теллеровские искажения, если они и существуют, крайне малы и не могут являться основным механизмом образования новой магнитной фазы выше  $T_c$ . Одна из возможных причин этого явления – орбитальное упорядочение решеток марганца [10]. Тем не менее, следует отметить, что ранее в исследованиях критического поведения однородной намагниченности в гейзенберговских ферромагнетиках  $\text{CdCr}_2\text{S}_4$  и  $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$  [8,9] также было обнаружено существование вблизи  $T_c$  двух температурных областей, скейлинговой и аномальной, с различным характером критических явлений. В скейлинговой области экспериментально определенное поведение линейной восприимчивости и высших гармоник находится в удовлетворительном согласии с выводами теории подобия. В аномальной температурной области, непосредственно прилегающей к  $T_c$  ( $\tau \leq 10^{-2}$ ), динамическая восприимчивость имеет “стекольное” поведение ( $\chi' \propto \lg \omega$ ,  $\chi''$  практически не зависит от  $\omega$ ), наблюдается полевой гистерезис второй гармоники и т.п.

Таким образом, результаты проведенных экспериментов показывают, что в парамагнитной фазе картина критических явлений в  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$  схожа с явлениями, наблюдавшимися в гейзенберговских кубических ферромагнетиках выше  $T_c$ .

Особую благодарность выражаем И. О. Троянчуку и Д. Д. Халявину (ИФТТП, НАН РБ) за плодотворное сотрудничество в рамках совместного проекта БРФФИ-РФФИ, Ю. П. Черненко за проведение структурных исследований, С. М. Дунаевскому за полезные обсуждения, И. А. Киселеву, И. Р. Мецхваришвили и Я. В. Грешневой за участие в эксперименте. Работа выполнена в рамках проектов РФФИ # 00-02-81205-Бел2000а и # 00-02-16729.

1. D. L. Huber, J. Phys. Chem. Solids **32**, 2145 (1971).
2. С. В. Малеев, ЖЭТФ **66**, 1809 (1974).
3. Г. Б. Тейтельбаум, Письма в ЖЭТФ **21**, 339 (1975).
4. А. З. Паташинский, В. Л. Покровский, Флуктуационная теория фазовых переходов, М.: Наука, 1982.
5. S. V. Maleev, Phys. Rev. **A8**, 323 (1987).
6. А. В. Лазута, И. И. Ларионов, В. А. Рыжов, ЖЭТФ **100**, 1964 (1991).
7. I. O. Troyanchuk, D. D. Khalyavin, S. V. Trukhanov, and H. Szymczak, J. Phys.: Condens. Matter. **11**, 8707 (1999).
8. И. Д. Лузянин, В. П. Хавронин, ЖЭТФ **85**, 1029 (1983).
9. И. Д. Лузянин, В. П. Хавронин, ЖЭТФ **87**, 2129 (1984).
10. S. Okamoto, S. Ishihara, and S. Maekawa, Phys. Rev. **B61**, 451 (2000).