

## СПИНОВЫЕ КОРРЕЛЯЦИИ И МАГНИТНО-ЯДЕРНЫЕ КРОСС-КОРРЕЛЯЦИИ В $\text{Sm}(\text{Sr})\text{-Mn-O}$ ПЕРОВСКИТЕ В НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЙ ФАЗЕ

В.В.Рунов<sup>1)</sup>, Х.Глаттли<sup>+2)</sup>, Г.П.Копица, А.И.Окороков, М.К.Рунова

Санкт-Петербургский институт ядерной физики РАН  
188350 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

<sup>+</sup>SPEC, Saclay, CEA, France

Поступила в редакцию 26 января 1999 г.

Представлены результаты измерений спиновых корреляций и магнитно-ядерных кросс-корреляций (MNCC) в  $^{154}\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  системе со структурой перовскита ( $x = 0.25; 0.4$ ) в низкотемпературной фазе в магнитных полях  $0 < H < 1$  кЭ, выполненных впервые методом малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов (SAPNS). Показано, что в системе существуют ферромагнитные корреляции масштаба 180 – 250 Å и MNCC, характеризующие взаимосвязь магнитной и решеточной подсистем в этом масштабе. Найдено, что в низкотемпературной фазе система обладает спин-стекловыми свойствами.

PACS: 75.40.-s, 75.50.Pp

В последние годы возрос интерес к системам  $(\text{R}_{1-x}^3\text{A}_x^{2+})\text{MnO}_3$  со структурой перовскита, обусловленный наличием колоссального отрицательного магнитосопротивления (CMR) в этих материалах вблизи температуры магнитного фазового перехода и возможностью технического использования этого явления. Исследователи всегда отмечали магнитную неоднородность этих систем, начиная, по-видимому, с работы [1], и высказывали предположения, что существование магнитных неоднородностей – их неотъемлемая и принципиальная особенность, которая и обеспечивает CMR (см., например, обзор [2] и работу [3]). Это привело в последние годы к нарастающему количеству исследований по малоугловому рассеянию нейтронов с целью поиска магнитных неоднородностей, связанных с разделением фаз по электропроводности, главным образом, в La-перовскитах [4–6].

В данной работе представлены проведенные исследования спиновых корреляций и магнитно-ядерных кросс-корреляций (MNCC) в  $^{154}\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  системе методом малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов (SAPNS), что дает возможность измерения магнитно-ядерной интерференции (MNI). Последнее, на наш взгляд, является наиболее важным преимуществом использования поляризованных нейтронов при исследовании систем с CMR, поскольку представляет экспериментальную возможность изучения взаимосвязи магнитной и решеточной подсистем в масштабе  $10 \div 1000$  Å. Интерференционный член, пропорциональный произведению ядерной и магнитной амплитуд рассеяния, можно выделить, анализируя разность интенсивностей рассеянных нейтронов, поляризованных по и против направления вектора намагниченности образца. Как показано в [7, 8], интерференционный анализ позволяет изучать очень слабые магнитные эффекты (соответственно, ядерные) в присутствии доминирующего ядерного или магнитного члена.

<sup>1)</sup> e-mail: runov@hep486.pnpi.spb.ru

<sup>2)</sup> H.Glattli.

В данной работе показано, что в Sm-системе в низкотемпературной области существуют ферромагнитные корреляции масштаба  $180 \div 250 \text{ \AA}$  и MNCC такого же масштаба. Взаимосвязь магнитной и решеточной подсистем в этом масштабе необходимо учитывать при интерпретации электронных и транспортных свойств системы.

**1. Описание эксперимента.** Измерения SAPNS на Sm-системе были выполнены на установках малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов ВЕКТОР [9] (реактор ВВР-М, Гатчина) и PAPOL [10] (JLB, Сакле, Франция). Установка ВЕКТОР: рабочая длина волны  $\lambda = 9.2 \text{ \AA}$ ,  $\Delta\lambda/\lambda = 0.25$ ; оборудована многоканальным анализатором, что позволяет измерять рассеяние и проводить полный поляризационный анализ в диапазоне векторов рассеяния  $0 < q < 3 \cdot 10^{-1} \text{ \AA}^{-1}$  в щелевой геометрии ( $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'$ , где  $\mathbf{k}, \mathbf{k}'$  – волновые векторы падающих и рассеянных нейтронов соответственно); исследовался образец с  $x = 0.25$  в диапазоне температур  $16 < T \leq 300 \text{ K}$  в магнитных полях  $0 < H_z < 150 \text{ Э}$  (ось  $z$  направлена вдоль  $\mathbf{k}$ ). Установка PAPOL:  $\lambda = 8 \text{ \AA}$ ,  $\Delta\lambda/\lambda = 0.1$ ; измерение рассеяния нейтронов в точечной геометрии с регистрацией рассеяния двухкоординатным детектором; исследовался образец с  $x = 0.4$  при  $T = 12.5; 53; 85; 100; 150; 300 \text{ K}$  в магнитных полях  $H_z \leq 1 \text{ кЭ}$ . Измерения проводились в криорефрижераторах DISPLEX (PAPOL) и RNK10-300 (ВЕКТОР) с температурной стабилизацией  $\simeq 0.1 \text{ K}$ . Образцы находились в атмосфере газообразного гелия, который использовался в качестве теплообменного газа.

Изучались порошковые образцы  $^{154}\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ , полностью обогащенные 154-изотопом самария, с размерами  $8 \times 45 \text{ мм}$  и толщиной  $2 \text{ мм}$ , которые были синтезированы по керамической технологии. Размер зерна составлял  $5 \div 10 \text{ мкм}$ . Результаты исследований структуры нейтрон-дифракционным методом (ND), магнитных и транспортных свойств данных образцов приведены в [11]. ND измерениями установлено, что система обладает искаженной структурой перовскита. При уточнении структурных параметров найдено, что образец с  $x = 0.25$  лучше описывается моноклинной структурой ( $P112_1/a$ ,  $N14$ ), в то время как для  $x = 0.4$  лучшее описание дает орторомбическая структура ( $Pnma$ ,  $N62$ ). Согласно магнитным и ND измерениям, в образце с  $x = 0.4$  наблюдается переход в магнитно-упорядоченную фазу при  $T = 110 \div 130 \text{ K}$ , а в образце с  $x = 0.25$  – резкий рост магнитной восприимчивости при  $T = 90 \div 100 \text{ K}$ , что свидетельствует об изменении магнитного упорядочения. Авторы [11] отмечают значительное уширение дифракционных пиков, причиной которого могут быть мелкомасштабные, в сравнении с размером зерна, ядерные или магнитные образования. Согласно данным температурных зависимостей удельного сопротивления, образец с  $x = 0.25$  не переходит в "металлическое" состояние при низких температурах, в отличие от образца с  $x = 0.4$ , на котором наблюдалось изменение типа проводимости на "металлическую" при  $T \leq 125 \text{ K}$ . Магнитные и электрические свойства изучаемых образцов хорошо коррелируют со свойствами Sm-системы, описанной в [12].

**2. Результаты SAPNS измерений и обсуждение.** На рис.1 показан типичный вид температурной зависимости интенсивности рассеяния  $I(T)$  и поляризации  $P(T)$  в образце с  $x = 0.25$  в измеряемом диапазоне  $q$  для слабого ведущего магнитного поля  $H \approx 2 \text{ Э}$ , обеспечивающего адиабатическое движение вектора поляризации, и поля  $H_z = 130 \text{ Э}$ .  $I(T)$  приведены с вычетом фона, в качестве которого использовались измерения при  $T = 300 \text{ K}$ . Как видно из рис.1, переход начинается при  $T \simeq 115 \text{ K}$  (начало изменения  $P(T)$  и  $I(T)$ ) и затянута по температуре. Магнитное

поле  $H_z = 130$  Э не способствует гомогенизации системы, как это имеет место в магнито-мягких материалах [13], а скорее усиливает неоднородность системы. Кроме того, при понижении температуры поляризация не падает до нуля, а выходит на некоторый минимальный уровень. В то же время оценки показывают, что при возникновении ферромагнитного упорядочения в масштабе зерна поляризация при  $H \approx 0$  должна быть равна нулю при данной толщине образца.

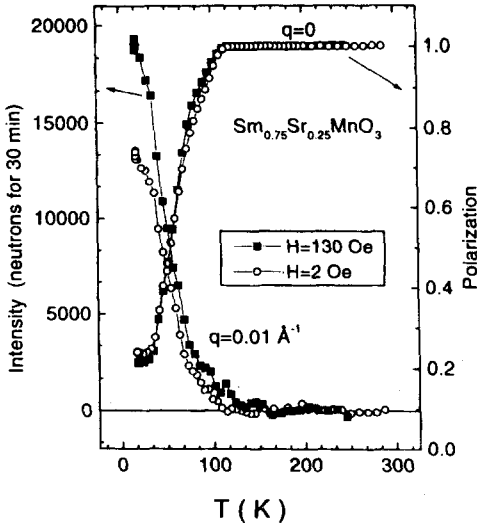


Рис.1. Температурная зависимость поляризации и интенсивности рассеянных нейтронов в образце  $^{154}\text{Sm}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$

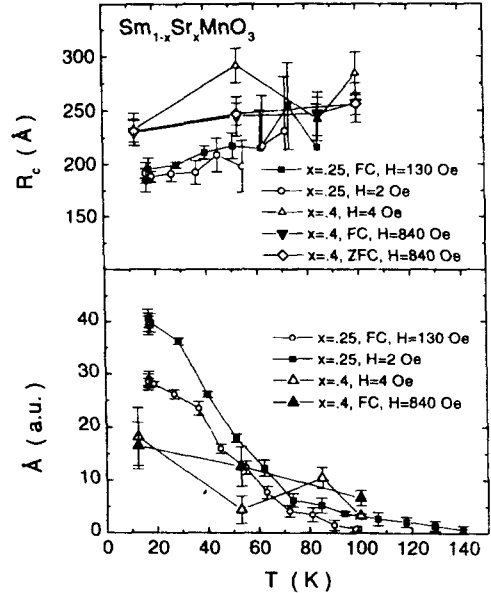


Рис.2. Температурная зависимость корреляционного радиуса  $R_c$  и параметра  $A$  в (1) в системе  $^{154}\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  при различных условиях измерений

Анализ зависимостей  $I(q)$  при  $T < 115$  К показал, что они хорошо описываются квадрированным лоренцианом:

$$I(q) = \frac{A}{(q^2 + \kappa^2)^2}, \quad (1)$$

где  $A$  и  $\kappa = 1/R_c$  – свободные параметры, а  $R_c$  имеет смысл характерного радиуса корреляций. В координатном представлении (1) соответствует рассеянию на экспоненциально спадающем с расстоянием  $r$  корреляторе спинов  $S_i, S_j$  вида

$$\langle S_i S_j \rangle \propto \exp -r/R_c. \quad (2)$$

Значения параметров  $A$  и  $R_c$ , полученных как свертка (1) с функцией разрешения установки, показаны на рис.2. Там же приведены значения параметров для образца с  $x = 0.4$  при различных условиях измерений, рассеяние на котором также удовлетворительно описывается (1) при  $T < 130$  К.

На рис.3–5 показана разница  $\Delta I(q) = I^+(q) - I^-(q)$  интенсивности рассеяния нейтронов, поляризованных по (+) или против (-) направления магнитного поля, в зависимости от  $T, H$  и условий охлаждения образца (ZFC – охлаждение в нулевом,

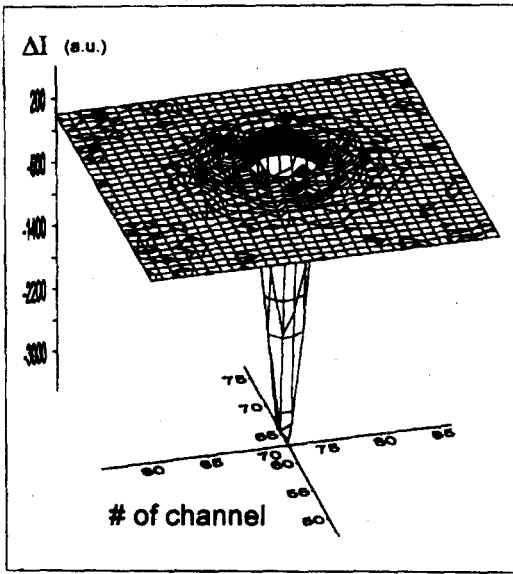


Рис.3. Трехмерное изображение  $\Delta I(q) = I^+(q) - I^-(q)$  в образце  $^{154}\text{Sm}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  при  $T = 85 \text{ K}$ ,  $H = 140 \text{ Э}$ . Измерения проведены на установке PAPOL с двухкоординатным позиционно-чувствительным детектором с числом каналов  $128 \times 128$ . Один детекторный канал соответствует  $q \approx 0.001 \text{ \AA}^{-1}$

ведущем, магнитном поле с последующим включением поля  $H$  и FC – охлаждение и измерение в поле  $H$ ). Типичная трехмерная картинка  $\Delta I(q)$  приведена на рис.3. На рис.5 приведены данные, усредненные по радиусу с  $q = \text{const}$  в плоскости детектора. Относительная величина  $\Delta I / (I^+ + I^-)$  составляет в эксперименте величину порядка процента. Как показано в [7],  $\Delta I(q)$  пропорциональна двум слагаемым:

$$\Delta I \propto 2\text{Re}[\langle \psi_0 \psi_m^* \rangle + \langle \psi_n \psi_m^* \rangle], \quad (3)$$

$$\int \Delta I(q) dq = 0. \quad (4)$$

Условие (4) следует из оптической теоремы. Первое слагаемое в (3) соответствует интерференции прямого пучка и магнитного рассеяния, а второе – интерференции ядерного и магнитного рассеяния ( $\psi_0, \psi_n, \psi_m$  – волновые функции нейтронов, не испытавших рассеяния, и нейтронов, рассеянных на ядерном потенциале и магнитном, знак которого зависит от ориентации поляризации нейтронов относительно поля). Из (4) следует, что слагаемые в выражении (3) должны иметь разные знаки, что видно в эксперименте (рис.3, 5) как разный знак  $\Delta I(q)$  в диапазоне  $q < q_{\min}$  (то есть в области прямого пучка, где  $q_{\min}$  – предельное импульсное разрешение установки) и в диапазоне  $q > q_{\min}$  (в области, где превалирует рассеяние) [7]. Из факта наблюдения смены знака следует, что разрешение прибора позволяет отделять рассеяние на MNCC от прямого пучка. Это дает верхнюю оценку характерного размера корреляций, регистрируемых в эксперименте:  $R_{mn} \leq R_{\max}$ , где  $R_{\max} \approx 1/q_{\min}$  – предельное разрешение прибора. В данном эксперименте  $R_{\max} \sim 400 \text{ \AA}$ .

Магнитно-ядерная кросс-корреляционная функция  $G_{mn}(\mathbf{r})$  может быть записана [7, 14] как

$$G_{mn}(\mathbf{r}) = \frac{1}{V} \int (\rho_m(\mathbf{r}') - \bar{\rho}_m)(\rho_n(\mathbf{r} + \mathbf{r}') - \bar{\rho}_n) d\mathbf{r}', \quad (5)$$

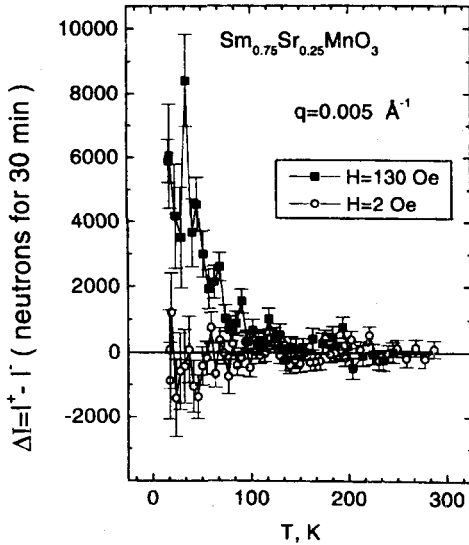


Рис.4. Температурная зависимость  $\Delta I(q) = I^+(q) - I^-(q)$  в образце  $^{154}\text{Sm}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$  при различных условиях измерений. Данные нормированы на поляризацию прошедшего пучка нейтронов

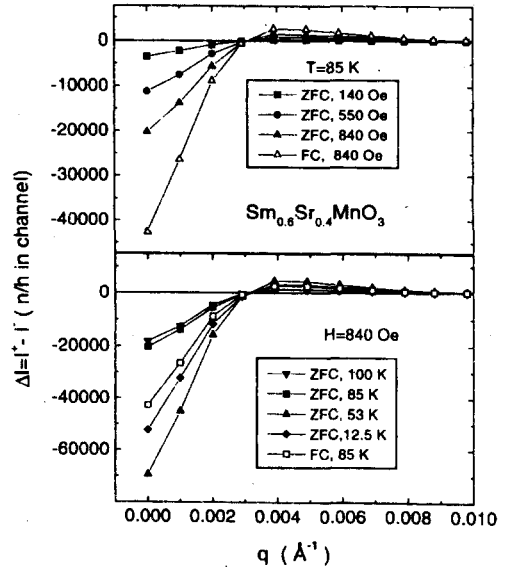


Рис.5. Импульсная зависимость  $\Delta I(q) = I^+(q) - I^-(q)$  (в единицах нейтроны/час в один канал) в образце  $^{154}\text{Sm}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  при различных условиях измерений. Данные нормированы на поляризацию прошедшего пучка нейтронов

где  $V$  – объем образца,  $\rho_m, \rho_n$  – магнитная и ядерная плотности длин рассеяния, соответственно.  $\Delta I_{mn}$ , обусловленная MNI (второе слагаемое в (3)), соответствует фурье-образу  $G_{mn}(\mathbf{r})$ . Для дальнейшего анализа необходима модель и измерения с хорошей статистикой  $\Delta I(q)$ , для того чтобы выделить и описать  $\Delta I_{mn}$  [7]. В данной работе мы ограничимся оценками и качественными выводами. Как видно из рис.3–5, интерференционный эффект хорошо наблюдаем в низкотемпературной фазе для обоих образцов. Он увеличивается с повышением магнитного поля и, в целом, с понижением  $T$ , кроме того, зависит от способа охлаждения ZFC или FC. Наблюдаемый знак  $\Delta I_{mn}$ , согласно (5), соответствует синфазному по знаку изменению магнитной и ядерной плотности [7, 14].

В целом, магнитное состояние Sm-системы с  $x = 0.25$  при  $T < 115$  K можно характеризовать, по-видимому, как ненасыщенный ферромагнетик, в котором развиты ферромагнитные флуктуации вида (2), концентрация которых, пропорциональная параметру  $A$ , довольно сильно растет с понижением  $T$ , а размер  $R_c$ , скорее всего, слегка уменьшается с понижением  $T$  (рис.2). Это же относится и к образцу с  $x = 0.4$ , в котором согласно ND измерениям наблюдается дальний магнитный порядок, по-видимому, перкаляционного типа.  $R_c$  в нем больше, чем для образца с  $x = 0.25$ , а концентрация не так сильно зависит от  $T$ . Наблюдаемая в образцах MNI указывает на довольно сильную взаимосвязь магнитной и решеточной подсистем в масштабе  $\sim R_c$ . Грубые оценки (оценки по минимуму) показывают, что для объяснения наблюдаемой интерференции в образце с  $x = 0.25$  относительное изменение плотности ядерной амплитуды, синхронное с магнитной в скоррелированных областях, должно быть больше процента. (При оценке считалось, что размер скоррелированных облас-

тей  $\sim R_c$ ,  $\Delta I_{mn} \propto 4(\rho_m - \overline{\rho_m})(\rho_n - \overline{\rho_n})$ ,  $I_m \propto (\rho_m - \overline{\rho_m})^2$  и  $I_n(T = 300 \text{ K}) \propto (\overline{\rho_n})^2$ . Полученная статистическая точность параметров корреляций (рис.2) не позволяет провести их анализ в зависимости от режимов охладений (ZFC-FC), однако наблюдается зависимость в  $\Delta I(q)$  от магнитной предыстории образца, и был замечен гистерезис в  $P(T)$  на образце с  $x = 0.25$ , что типично для спин-стекольных систем [15].

Общая оценка низкотемпературного магнитного состояния Sm-системы, полученная в данной работе, согласуется с магнитными и ND измерениями, в которых наблюдалось уширение дифракционных пиков [11]. Однако для объяснения магнитных свойств изучаемой и подобных систем и понимания взаимосвязи магнитной и решеточной подсистем необходимы дальнейшие исследования магнитных корреляций как на Sm-образцах, так и на других перовскитах и, желательно, на поли- или монокристаллических образцах.

Авторы благодарны В.А.Трунову за обсуждения и любезно предоставленные образцы, С.М.Дунаевскому и Д.Ю.Чернышову за полезные дискуссии, С.В.Григорьеву и С.А.Климко за помощь в измерениях и обсуждения.

Работа поддержана проектами Российского фонда фундаментальных исследований (#98-02-17632, #Л-ЕН-96-15-96775) и Государственной научно-технической программой "Нейтронные исследования конденсированных сред".

- 
1. E.O.Wollan and W.C.Koehler, *Phys.Rev.* **100**, 545 (1955).
  2. Э.Л.Нараев, УФН **166**, 833 (1996).
  3. J.B.Goodenough and J.S.Zhou, *Nature* **386**, 229 (1997).
  4. J.M.De Teresa, M.R.Ibarra, P.A.Algarabel et al., *Nature* **386**, 256 (1997).
  5. C.Ritter, M.R.Ibarra, J.M.De Teresa et al., *Phys. Rev* **B56**, 8902 (1997).
  6. M.Viret, H.Glattli, C.Fermon et al., *Europhys. Lett.* **42**, 301 (1998); *Physica* **B241-243**, 430 (1998).
  7. G.Gordeyev, A.Okorokov, V.Runov et al., *Physica* **B234-236**, 837 (1997); in: *Proc. of Intern. Seminar "PNCMI-96*, Dubna, June 18-20, 1996, p. 65.
  8. Г.П.Копица, В.В.Рунов, А.И.Окороков, ФТТ **40**, 23 (1998).
  9. С.В.Григорьев, О.А.Губин, Г.П.Копица и др., Препринт ПИЯФ - 2028, Гатчина (1995).
  10. M.G.D.Van der Grinten, H.Glattli, and M. Pinot, *Neutron News* **6**, 18 (1995).
  11. С.М.Дунаевский, А.И.Курбаков, В.А.Трунов и др., ФТТ **40**, 1271 (1998).
  12. F.Damay, N.Nguen, A.Maignan et al., *Solid State Commun.* **98**, 997 (1996).
  13. А.И.Окороков, А.Г.Гукасов, В.В.Рунов и др., ЖЭТФ **81**,1462 (1981).
  14. S.Komura, T.Takeda, and Y.Endoh, *JMMM* **50**, 69 (1985).
  15. В.В.Рунов, С.Л.Гинзбург, Б.П.Топерверг и др., ЖЭТФ **94**, 325 (1988).